

ORSAY

Série A

N° d'ordre

766

T H E S E

PRESENTEE

A L'UNIVERSITE DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

par

Ubirajara PEREIRA de BRITO

EFFACEMENT THERMIQUE DES TRACES DE FISSION
DANS LE MICA MUSCOVITE :
CONSEQUENCES EN GEOCHRONOLOGIE

Soutenue le 30 avril 1971, devant la Commission d'Examen

MM. R. BROUSSE

Président

J. FAUCHERRE

Mle C. LALOU

MM. J. LABEYRIE

P. PELLAS

Examineurs

ORSAY
Série A
N° d'ordre
766

T H E S E

PRESENTEE

**A L'UNIVERSITE DE PARIS-SUD
CENTRE D'ORSAY**

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

par

Ubirajara PEREIRA de BRITO

**EFFACEMENT THERMIQUE DES TRACES DE FISSION
DANS LE MICA MUSCOVITE :
CONSEQUENCES EN GEOCHRONOLOGIE**

Soutenue le 30 avril 1971, devant la Commission d'Examen

MM.	R. BROUSSE	Président
	J. FAUCHERRE	} Examineurs
Mle	C. LALOU	
MM.	J. LABEYRIE	
	P. PELLAS	



T A B L E D E S M A T I E R E S

	Pages
INTRODUCTION	1
CHAPITRE I	5
Caractéristiques générales des traces et de leur révélation dans les différents minéraux	5
Traces de fission dans les micas	5
Stabilité des traces	9
CHAPITRE II	15
Introduction	15
Variation des paramètres de révélation	16
Variation de la température de recuit	21
Conclusions	26
CHAPITRE III	27
Introduction	27
Abaque de correction	27
Vérification expérimentale	28
CHAPITRE IV	33
Application de la méthode de correction à des micas muscovite de diverses origines	33
Discussion des résultats	43
CONCLUSIONS	47
ANNEXE I	
Principe de la méthode de datation par les traces de fission	49
ANNEXE II.	
Précaution expérimentales	55
Impératifs d'échantillonnages	55
Impératifs de traitement des échantillons irradiés	59
REFERENCES	67

Pour Ceinha, Ludmila et Bira

Que l'humanité soit présente au rendez-vous
des continents à l'autre côté de la Terre,
sans trop de peine.

AVANT PROPOS

Je prie Monsieur Jacques LABEYRIE, directeur du Centre des Faibles Radioactivités, d'accepter ici mes remerciements les plus sincères pour m'avoir accueilli dans son Laboratoire et pour avoir suivi et encouragé le développement de ce travail.

Je tiens à remercier Monsieur le Professeur Robert BROUSSE pour l'aide qu'il m'a apportée en m'initiant aux divers problèmes géologiques que j'ai eu à traiter, pour les discussions fructueuses que j'ai eues avec lui et avec son équipe du Laboratoire de Pétrographie de la Faculté des Sciences d'Orsay, et pour avoir accepté de présider ce jury.

Mes remerciements vont aussi à Monsieur le Professeur Jacques FAUCHERRE qui a, avec bienveillance, accepté de faire partie de ce jury.

Que Mademoiselle Claude LALOU qui, depuis 5 ans, oriente et suit mon travail au Centre des Faibles Radioactivités, trouve ici le fruit de son dévouement incomparable et accepte l'expression de ma profonde gratitude.

Je voudrais tout particulièrement remercier Monsieur Paul PELLAS, qui, par les nombreuses discussions que j'ai eues avec lui et ses collaborateurs, a beaucoup contribué à l'ensemble de ce travail, et qui me fait l'honneur de participer à ce jury.

La complexité même de mon travail m'a amené à collaborer avec de nombreux chercheurs de différents services.

Au Centre des Faibles Radioactivités, où ce travail a été effectué, je voudrais remercier tous les chercheurs et techniciens qui, de près ou de loin, m'ont aidé dans la réalisation de ce travail.

Parmi ceux-ci, je citerai principalement G. VALLADAS dont les connaissances en physique m'ont été d'une très grande utilité, D. NORDEMANN pour les discussions que j'ai pu avoir avec lui, Y. CORNETTE et B. DAVID qui, avec H. BELLON du Laboratoire de Pétrographie de la Faculté des Sciences d'Orsay, ont effectué pour moi les datations par la méthode potassium-argon, P. BUAT-MENARD pour son aide dans l'interprétation des mesures γ de l'activité de mes échantillons, B. ARDOUIN, pour les mesures β et pour la gentillesse permanente avec laquelle elle m'a rendu service, E. BROSSARD qui m'a été d'une aide précieuse dans la fastidieuse tâche du comptage des traces et enfin N. MONEYRON avec qui j'ai pu avoir d'intéressantes discussions géologiques.

Au Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay, auprès des services de la pile EL3, j'ai toujours trouvé le plus grand esprit de collaboration ; que Monsieur RENTIEN, du Service des Radioéléments, trouve ici l'expression de mes plus sincères remerciements.

C'est grâce aux différents chercheurs du Laboratoire de Pétrographie de la Faculté des Sciences d'Orsay que j'ai pu effectuer la partie géologique de ce travail, particulièrement grâce à la collaboration amicale de Messieurs GOUHIER et MAURY.

La partie de ce travail concernant plus particulièrement les traces a été discutée avec Messieurs CANTELAUBE, POUPEAU et LORIN, chercheurs de l'équipe de Monsieur PELLAS, au Laboratoire de Minéralogie du Museum ; pour leur aide et leur esprit de collaboration, je les remercie sincèrement.

L'aide de José VARGAS, du Centre d'Etude Nucléaires de Grenoble, m'a aussi été très précieuse; qu'il en soit ici remercié.

Enfin, je voudrais remercier le secrétariat du Service d'Electronique Physique de Saclay Mesdames KNODLER, ROTHENFLUG, SARDIN et Mademoiselle CUPPARI, et celui du Centre des Faibles Radioactivités, Mesdames SPYRIDAKIS et BOULANGER, qui m'ont toujours facilité les démarches administratives.

Par ailleurs, mes remerciements vont à Monsieur GILGUY, du Bureau d'Etudes de Saclay, qui m'a beaucoup aidé dans l'illustration de ce travail.

Je dois des remerciements spéciaux à Joao MEYER qui m'a fait faire la connaissance de Monsieur Jacques LABEYRIE et qui m'a toujours encouragé dans mon travail.

INTRODUCTION

Il y a une dizaine d'années déjà que SILK et BARNES (1) ont constaté que les feuillets de mica irradiés par des fragments de fission présentaient des zones endommagées rectilignes observables au microscope électronique. En 1962, PRICE et WALKER (2) ont mis en évidence ces dommages au microscope optique après une attaque à l'acide fluorhydrique et ont montré que les micas naturels présentaient cette même sorte de défauts (3). Des traces ont aussi été révélées dans les plastiques (4) et dans d'autres matériaux isolants.

En 1964, MAURETTE, PELLAS et WALKER (5) ont mis en évidence des traces dans les cristaux d'olivine des météorites. Avant même cette expérience, FLEISCHER, PRICE et WALKER (2) avaient montré que ces régions endommagées pouvaient être produites par d'autres particules que les fragments de fission et que les traces dans les micas ne pouvaient être enregistrées que pour des ions de masse supérieure à 30 (6,7).

On était donc devant une nouvelle et puissante méthode de recherches, applicable aussi bien à des études physiques que chimiques ou géophysiques, dont il fallait approfondir les bases et les possibilités d'application. Les premiers essais de synthèse sont apparus à partir de 1965 (8,9).

L'enregistrement de traces produites artificiellement a permis de mieux connaître le phénomène en ce qui concerne, d'une part, les caractéristiques de production des traces révélables et, d'autre part, les caractéristiques des détecteurs.

Seuls les matériaux isolants enregistrent les traces; celles-ci sont enregistrées en fin de parcours des particules.

FLEISCHER et al (10) ont construit un modèle pour définir les longueurs des traces pour différents ions dans différents détecteurs en utilisant la perte d'énergie par ionisation primaire. Les résultats expérimentaux sont, en général, en accord avec leurs prévisions. Ce modèle a permis de déterminer l'abondance cosmique des ions VVH (11) au moyen de détecteurs plastiques portés en altitude par des ballons.

Si pour une particule relativiste, la longueur de la trace ne dépend que de sa charge et des caractéristiques du détecteur, pour des particules issues de réactions nucléaires de moyenne énergie, la longueur de la trace ne suffit pas pour déterminer la charge, donc pour identifier la particule, étant donné qu'elle n'est qu'une fraction de la trace théorique maximale. Le diamètre, la distribution angulaire, l'énergie critique d'enregistrement (caractéristique du détecteur) sont d'autres paramètres que l'on peut utiliser pour appliquer la méthode des traces en physique nucléaire.

Si l'on compare les émulsions nucléaires et les détecteurs artificiels de traces (verres ou plastiques par exemple) on constate que les émulsions nucléaires sont beaucoup plus sensibles; le détecteur de traces le plus sensible (nitrate de cellulose) n'enregistre que les particules alpha d'environ 3 MeV, tandis que les émulsions nucléaires sont capables d'enregistrer même les rayons β de très faible énergie. Cependant ce manque de sensibilité permet, par les détecteurs de traces, de faire une analyse des ions par tranche de Z, sans aucun

bruit de fond, ce qui n'est pas possible avec les émulsions nucléaires. De plus, la méthode des traces ne s'arrête pas aux applications en physique nucléaire ; l'existence de traces fossiles dans les minéraux terrestres et extra-terrestres en fait un instrument efficace de recherches en géochimie et géophysique.

Dans les minéraux naturels, les traces fossiles peuvent être dues :

- a) - à la fission spontanée des éléments fissiles ;
- b) - aux fragments ou noyaux de recul de spallation produits par l'interaction du rayonnement cosmique avec les composants lourds et très lourds de la matière dense ;
- c) - aux ions lourds et très lourds du rayonnement cosmique primaire ;
- d) - à l'action des monopoles magnétiques prédits par DIRAC.

1) - Les traces dans les météorites.

L'étude des traces dans les cristaux de météorites a été effectuée essentiellement, en Amérique, par FLEISCHER, PRICE et WALKER, en France, par MAURETTE et PELLAS et aux Indes, par LAL.

Pour les minéraux extra-terrestres, les résultats obtenus jusqu'à présent confirment les origines a, b et c pour les traces, mais on n'a pas encore écarté définitivement l'origine d.

Dans un minéral de météorite on peut donc avoir des traces dues à trois origines, cependant on peut facilement les différencier, en effet, les traces de fission spontanée présentent une répartition isotrope.

En choisissant des minéraux très pauvres en uranium, donc pratiquement exempts de traces de fission spontanée, CANTELAUBE (12) a pu calculer l'épaisseur d'ablation de la météorite Saint-Séverin, en comparant la densité de traces d'ions lourds trouvée en surface sur les différentes faces des fragments à la densité théorique prévue (10). Des cristaux plus riches en uranium, par exemple la whitlockite, et prélevés suffisamment en profondeur dans la météorite pour être à l'abri de l'action des ions lourds cosmiques primaires, permettent d'étudier les traces de fission (12).

Cependant, la quantité d'uranium présent dans ces minéraux ne rend pas compte de la totalité des traces trouvées : on aurait là une preuve de l'existence du plutonium 244, nucléide éteint.

La longueur des traces est un paramètre qui peut être utilisé pour connaître leur origine : les traces d'ions lourds (dus principalement aux ions du groupe du fer) dans l'hypersthène et les traces de fission dans la whitlockite, minéral riche en uranium, ont des longueurs maximales de 12 et 13 μ respectivement. MAURETTE et al(13) ont pu mettre en évidence des traces de quelques centaines de microns qui seraient probablement dues à la composante très lourde du rayonnement cosmique primaire. Quant aux traces de fragments et noyaux de recul de spallation, elles ont une longueur maximale de 4 à 5 μ , mais leur nombre est négligeable par rapport aux autres traces que l'on trouve dans les météorites pour les âges d'irradiation que l'on rencontre généralement.

2) - Traces dans les roches terrestres.

En ce qui concerne les minéraux terrestres, la contribution des traces d'origine b et c

est négligeable (14), quant à l'origine d, une seule expérience a été faite (15), qui ne confirme d'ailleurs pas l'hypothèse de DIRAC.

Les fragments de fission du thorium et de l'uranium sont susceptibles de donner naissance à des traces révélabiles, cependant, étant donné la différence entre les constantes de décroissance radioactive du thorium et de l'uranium et leur abondance relative, on peut négliger les traces fossiles dues au thorium (14). On constate, en général, une bonne concordance entre les teneurs en uranium des minéraux, leur âge et le nombre de traces observées; toutefois, FLEROV et PERELYGIN (16) ont trouvé un excès de traces dans les minéraux terrestres riches en plomb (cérusite); ils attribuent cet excès de traces à un transuraniien éteint. OTGONSUREN et al (17) ont aussi observé un excès de traces dans les nodules de manganèse.

Il était donc logique de penser à l'utilisation des traces en géochronologie. En effet, cette méthode a été mise au point par PRICE et WALKER en 1963 (14).

La principale difficulté pour l'application de la méthode des traces à la datation des roches est la détermination de la concentration en uranium, non seulement parce que les micas, par exemple, ne sont pas très riches en uranium (en moyenne 1 ppm), mais aussi parce qu'on ne peut tenir compte des inclusions riches en uranium au voisinage desquelles le comptage des traces est rendu impossible par la forte densité de celles-ci. Les méthodes radiochimiques de dosage de l'uranium ne sont pas utilisables puisqu'elles donnent une teneur globale en uranium, y compris les inclusions. Par ailleurs, la teneur en uranium doit être étudiée cristal par cristal et les méthodes radiochimiques ne sont pas en mesure de détecter d'aussi faibles teneurs en uranium. Cependant, PRICE et WALKER (18) ont mis au point une méthode simple pour la détermination de la concentration en uranium par comptage des traces de fission induites par des neutrons thermiques. L'utilisation de cette méthode, parallèlement à l'étude du nombre de traces dues à la fission spontanée de l'uranium dans un même cristal, doit permettre de le dater.

MAURETTE, PELLAS et WALKER (19), en 1964, ont daté des micas de diverses origines et ont constaté un certain désaccord entre les âges trouvés par la méthode des traces et les âges trouvés par les méthodes classiques.

Pour les tectites et les verres naturels, en général, FLEISCHER et al (20) ont trouvé des valeurs comparables à celles qu'on obtient par la méthode potassium-argon. Par ailleurs, STORZER et al (21) ont mis au point une méthode de correction qui permet de préciser ces âges. D'autres mesures d'âge de micas, apatites, verres naturels et artificiels et de quelques autres minéraux ont été faites par différents auteurs.

Une autre difficulté de l'application de la méthode des traces en géochronologie provient du fait que les traces peuvent être effacées même si le minéral n'a subi qu'un métamorphisme partiel. Dans les apatites, par exemple, les traces ne subsistent guère après un chauffage continu à 175°C pendant 10^6 ans (22).

La différence de comportement des minéraux vis à vis de la rétention d'une trace au cours du temps a permis à POUPEAU (23) de confirmer un métamorphisme récent dans la granite de Sandia.

La découverte par HUANG et al (24), par attaque très poussée de micas, de traces dues au recul des noyaux d'uranium et de thorium, par émissions successives de particules alpha, fournit une autre méthode de datation, nettement plus sensible que celle utilisant les traces de fission. Cependant, cette méthode n'a encore donné de résultats que pour quelques micas, ce qui la rend d'une utilisation moins générale que la méthode des traces de fission.

Si la méthode des traces a été abondamment utilisée en physique nucléaire et pour l'étude du rayonnement cosmique, elle a, jusqu'à présent, été peu utilisée pour les mesures d'âge, car on a une connaissance trop imparfaite des mécanismes d'effacement des traces, malgré les études déjà réalisées sur la réduction de leur longueur (25,40). Une étude de la cinétique d'effacement des traces en faisant varier les paramètres de révélation, peut apporter des précisions dans ce domaine.

Le chapitre I donnera les généralités sur les techniques d'étude des traces : minéraux pouvant enregistrer des traces, conditions optima de révélation dans les micas, choix des révélateurs, à partir, d'une part, des résultats déjà publiés, et, d'autre part, à partir de nos propres études.

Dans le chapitre II, on étudiera la cinétique de révélation des traces, ce qui nous amènera à envisager deux sortes de défauts dont nous établirons les relations avec les températures de recuit. Cette étude nous conduira à envisager, dans le troisième chapitre, une méthode de correction d'âge que nous illustrerons par différents exemples dans le chapitre IV.

CHAPITRE I

I. - CARACTERISTIQUES GENERALES DES TRACES ET DE LEUR REVELATION DANS DIFFERENTS MINERAUX.

En principe, tous les minéraux sont susceptibles d'enregistrer les traces dues au passage d'une particule chargée. Cette trace devient révélabile si la perte d'énergie par ionisation primaire dépasse une certaine valeur minimale (26).

La forme de la trace dépend des caractéristiques du détecteur, du réactif utilisé, ainsi que des paramètres concentration, température et temps de révélation. Sa longueur dépend aussi du réactif, mais surtout du détecteur (orientation de la trace par rapport aux plans du réseau cristallin, densité du détecteur, potentiel moyen d'ionisation). Le rapport entre la vitesse d'attaque le long de la trace et la vitesse d'attaque de la surface du cristal (V_T/V_S) fait varier la longueur de la trace.

Le tableau 1 présente les minéraux pour lesquels les dommages dus au passage des particules chargées ont déjà été révélés. La figure 1 présente des photographies au microscope optique des dommages révélés dans quelques minéraux.

Quelques règles générales peuvent être tirées des expériences de révélation :

- a) - les traces sont révélées dans les silicates des métaux alcalins par l'acide fluorhydrique;
- b) - les silicates des métaux alcalins-terreux ont comme révélateur soit la soude, soit la potasse ;
- c) - la présence d'oxyde de fer, à température égale, abaisse le temps de révélation pour l'attaque à l'acide; cependant on a constaté un effet contraire pour les attaques basiques (27) ;
- d) - la présence d'halogénures diminue aussi le temps d'attaque.

II. - TRACES DE FISSION DANS LES MICAS.

a) - Révélation

Dans une lamelle de mica irradiée par des fragments de fission, on peut révéler les traces de façon à les rendre visibles au microscope optique dans les conditions d'attaque suivantes :

- réactif : acide fluorhydrique concentré ou dilué ;
- temps et température d'attaque : à concentration d'acide constante, la révélation dépend du temps et de la température d'attaque. La figure 2 montre la variation du temps d'attaque en fonction de la température pour la révélation de toutes les traces pour de l'acide fluorhydrique à 40 %. A la température du laboratoire ($\sim 20^\circ\text{C}$) le temps d'attaque est 28 minutes pour le mica muscovite.

Il convient de dire que la différence entre la vitesse d'attaque le long de la trace et la vitesse d'attaque de la surface du mica est tellement grande que, même à température élevée (60°C), on peut encore, en quelques secondes, révéler les traces. Le tableau 2 donne les temps d'attaque pour une bonne révélation des traces dans les principaux micas, à 20°C , avec de l'acide fluorhydrique à 40 %.

SELS

MINERAUX	PRINCIPAUX COMPOSANTS	COMPOSANTS SECON- DAIRES	1	2	3	4	CONDITIONS DE REVELATION			
							Réactif	Concent. %	Tempéra- ture	Temps
Apatite	(CaF) Ca ₄ (PO ₄) ₃ ou CaCl Ca ₄ (PO ₄) ₃			+		24,8	H NO ₃	70 %	23°C	10-30sec
Whitlockite	B. Ca ₃ (PO ₄) ₂			+		23,8	H NO ₃	2,5 %	23°C	40 sec
Calcite	Ca CO ₃			+		20,0	HgCl ₂ ou CsCl CH ₃ CO ₂ H	concent. 100 %	23°C 23°C	5-20sec 1 min
Cérusite	Pb CO ₃					53,4	CH ₃ CO ₂ H	100 %	23°C	10-30min
Autunite	Ca (UO ₂) ₂ P ₂ O ₈ H ₂ O			+		46,2	HCl	10 %	23°C	10-30sec
Torbanite	Ca (UO) ₂ P ₂ O ₈ H ₂ O					42,0	HCl	10 %	23°C	10min
Barytine	Ba SO ₄		☒			38,8	H NO ₃	70%	100°C	3 h
Gypse	Ca SO ₄ 2 H ₂ O					14,3	HF	5 %	23°C	5-10sec
Fluorine	Ca F ₂					26,0	H ₂ SO ₄	98 %	23°C	10 min
Halite	Na Cl		☒			29,5	HgCl ₂ - ethanol	3g/l	23°C	30sec

1 minéraux ne présentant généralement pas de traces fossiles

2 minéraux datables de façon certaine par les traces

3 élément dont la charge est la charge minimale pour enregistrer une trace dans le minéral correspondant

4 masse atomique moyenne du minéral

Tableau I (suite 1)

NESO, SORO ET CYCLOSILICATES

MINERAUX	PRINCIPAUX COMPOSANTS									COMPOSANTS SECONDAIRES	1	2	3	4	CONDITIONS DE REVELATION			
	Si O ₂	Al ₂ O ₃	Na ₂ O	K ₂ O	CaO	Mg O	Mn, Fe oxydes	H ₂ O	F						Réactif	Concent. %	Tempéra- ture	Temps
Béryl	67,7	18,5	-	-	1,0	-	-	0,9	-	BeO : 12,9				19,4	KOH	concent.	150°C	9 h
Grenat	36,6	21,0	-	-	1,6	3,8	34,9	-	-					24,1	KOH	id	150°C	2 h
Topaze	32,5	55,6	-	-	-	-	-	2,4	15,5					18,5	KOH	id	150°C	1 7 h
Tourmaline	36,0	30,8	-	-	2,1	13,8	0,7	4,1	-	B ₂ O : 10,7				19,1	KOH	id	220°C	20min
Sphène	30,0	1,6	-	-	28,5	-	-	-	-	TiO : 40,1		+		26,0	HCl	id	80°C	45min
Olivine	40,2	-	-	-	-	47,5	12,6	-	-		☒			24,5	KOH HF (1)	10	160°C 23°C	6 min 30sec
Thorite															H ₃ PO ₄	85	250-300°C	1min
Zircon	32,5	-	-	-	-	-	-	-	-	ZrO ₂ · HfO ₂ 67		+		30,5	H ₃ PO ₄	85	450-500°C	1min

(1) 2 à 4 attaques alternées

Tableau I (suite 2)

INOSILICATES (PYROXENES ET AMPHIBOLES)

MINERAUX	PRINCIPAUX COMPOSANTS									COMPOSANTS	1	2	3	4	CONDITIONS DE REVELATION			
	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Na ₂ O	K ₂ O	CaO	Mg O	Mn,Fe oxydés	H ₂ O	F	SECONDAIRES					Réactif	Concent %	Tempé- rature	Temps
Enstatite	57,7	1,0	-	-	-	36,1	3,6	0,5	-				V	20,2	NaOH KOH	1500g/l concent.	159 °C 210 °C	35min 15min
Bronzite	55,1	1,2	-	-	-	29,1	12,2	-	-				V	21,3	NaOH id	1500g/l concent.	159 °C 200 °C	42min 6 min
Hypersthène	46,9	8,3	-	-	-	20,0	22,9	-	-				V	22,3	NaOH id	1500 g/l concent.	159 °C 300 °C	50min 15 min
Pigeonite	50,4	2,0	1,3	-	6,4	18,3	21,3	-	-				V	22,6	KOH	concent.	210 °C	15min
Diopside	54,7	-	-	-	25,8	18,9	0,7	-	-				V	21,7	NaOH KOH	1500g/l	159 °C 210 °C	80min 15 min
Augite	52,4	4,2	1,0	-	16,6	18,2	7,2	-	-		☒		V	21,7	NaOH KOH	1500g/l	159 °C 210 °C	90min 2min
Spodumène	64,9	26,7	-	-	-	-	0,6	-	-	Li ₂ O : 7,1				19,5	HF	48 %	23 °C	24 h
Hornblende	51,6	7,4	-	-	12,3	18,1	7,8	-	-			+		21,7	HF	48%	23 °C	60sec

Tableau I (suite 3)

PHYLLOSILICATES

MINERAUX	PRINCIPAUX COMPOSANTS									COMPOSANTS		1	2	3	4	CONDITIONS DE REVELATION			
	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Na ₂ O	K ₂ O	CaO	Mg O	Mn,Fe oxydes	H ₂ O	F	SECONDAIRES	Réactif					Concent %	Température	Temps	
Biotite	35,5	19,8	-	9,7	-	8,1	21,0	3,7	-			+	Si	21,0	HF	40	20	30sec	
Lépidolite	48,6	29,9	0,9	10,0	-	27,3	0,9	2,6	4,9			+	Si	19,8	HF	40	20	30sec	
Phlogopite	41,2	12,5	0,9	11,9	-	27,3	-	1,0	6,7			+	Si	20,9	HF	40	20	80sec	
Muscovite	45,8	38,7	0,6	10,1	-	-	-	4,7	-			+	Si	18,7	HF	40	20	35min	
Paragonite	46,8	40,0	6,4	-	1,3	0,6	-	4,8	-			+	Si	18,2	HF				
Zinnwaldite	43,7	22,9	0,7	9,6	-	-	14,2	1,3	5,5			+	Si	22,0	HF				
Chlorite	27,6	24,5	-	-	-	20,9	16,1	11,3	-			+		20,2	HF	48	23		
Clinochlorite	30,0	18,2	-	-	-	32,6	6,7	12,2	-			+		19,1	HF	48	23		
Pennine	33,8	12,9	-	-	-	34,9	5,2	13,1	-					16,8	HF	48	23	5 min	
Margarite	29,6	50,0	0,9	-	10,9	-	3,1	4,8	-		☒			20,4	HF	48	23	2 min	
Talc	62,6	-	-	-	-	30,2	2,5	4,2	-					19,6	HF	48	23	15min	

Tableau I (suite 4)

TECTOSILICATES (FELDSPATHS-PLAGIOCLASES)

MINERAUX	PRINCIPAUX COMPOSANTS									COMPOSANTS		1	2	3	4	CONDITIONS DE REVELATION			
	Si O ₂	Al ₂ O ₃	Na O	K ₂ O	CaO	Mg O	Mn.Fe oxydes	H ₂ O	F	SECONDAIRES						Réactif	Concen	Tempé rature	Temps
Anorthite	44,9	34,9	1,0	—	17,4	—	—	—	—						-21	NaOH KOH	1500g/l concent.	159 °C 210 °C	4,5min 30 min
Bytownite	49,5	31,2	3,4	—	14,0	—	1,0	—	—					TI	-21	NaOH KOH	1500g/l concent.	159 °C 210 °C	6,5min 15 min
Labradorite	54,4	29,9	5,6	—	10,5	—	0,6	—	—						-21	NaOH KOH	1500 g/l concent.	159 °C 210 °C	13,5min 15 min
Andésine	60,3	24,8	8,1	—	6,3	—	—	—	—						-21	NaOH	1500 g/l	159 °C	15 min
Oligoclase	54,9	21,3	10,1	—	2,1	—	1,1	—	—						-21	NaOH	1500 g/l	159 °C	20min
Albite	68,3	19,6	11,6	—	—	—	—	—	—						-21	NaOH	1500g/l	159 °C	23,5min
Orthoclase	65,4	20,0	5,3	8,9	—	—	—	—	—					P	20,6	HF	48 %	23 °C	10 sec
Microcline	65,5	19,6	5,5	9,0	—	—	—	—	—						21	HF	48 %	23 °C	1-10sec
Quartz	100													S	20	KOH	concent.	210 °C	10min
Tridymite	100														20	HF	10 %	23 °C	1 h

Tableau I (suite 5)

MICA	REACTIF	CONCENTRATION	TEMPERATURE	TEMPS
Muscovite	HF	40 %	20 °C	28 à 40 min.
Biotite	HF	40 %	20 °C	20 secondes à 1 minute
Phlogopite	HF	40 %	20 °C	2 minutes

Tableau II

b) - Longueur des traces

Dans les micas, un fragment de fission donne une longueur maximale pour une trace révélabile d'environ 13 μ . La trace totale, c'est-à-dire la trace produite par les deux fragments de fission atteint une longueur maximale de 21 μ . La figure 3 présente la distribution de longueur des traces fossiles et des traces induites dans des micas phlogopite et muscovite d'après MAURETTE et al (19).

c) - Forme des traces

Les traces dues aux fragments de fission dans le mica, pour les conditions d'attaque décrites précédemment (HF = 40 %, t = 28 minutes, T = 20° C), présentent une forme cylindrique que la perspective cavalière transforme en cône tronqué. Sur la figure 4 on voit des traces produites par des fragments de fission du californium 252 dans la muscovite. Leur forme, caractéristique d'une attaque correcte, peut changer en fonction des paramètres de révélation.

d) - Efficacité d'enregistrement

Les micas détectent tous les fragments de fission qu'ils reçoivent s'ils ont une charge supérieure à 13.

III. - STABILITE DES TRACES.

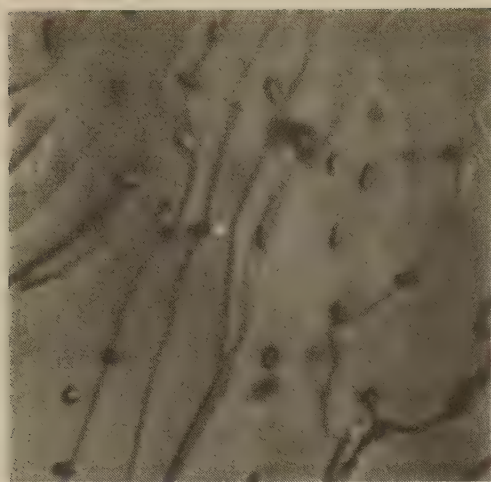
Pour appliquer la méthode des traces aux datations des roches, il est nécessaire d'étudier la stabilité des traces dans les diverses conditions physiques auxquelles peuvent avoir été soumises ces roches.

La pression (80 kbars) n'a pas d'influence mesurable sur la guérison des traces (8). L'effet de la température, par contre, est très important. Les traces se guérissent complètement dans l'apatite chauffée pendant 1 heure à 350° C (22). Si l'on chauffait ce minéral à 175° C pendant 10⁶ans, toutes les traces disparaîtraient. La hornblende et le zircon retiennent mieux les traces que les minéraux comme l'apatite et le mica. La figure 5 (28) montre les courbes de disparition des traces dans les différents minéraux en fonction de la température, et le tableau 3 montre, pour la muscovite, la variation de la température de disparition de 95% des traces en fonction du temps. On peut calculer, dans la mesure où l'extrapolation reste valable, que, à la température du laboratoire, les traces disparaîtraient complètement dans la muscovite en un temps inférieur à 10¹³ ans.

Alors que les traces, dans la muscovite, ne sont plus révélabiles après cuisson à 600° C pendant 2 heures, l'examen au microscope électronique de l'échantillon montre que la trace est devenue une suite de petits flots de dommages (14). Si l'on chauffe l'échantillon à 900° C, les flots de dommages ne sont plus visibles, même au microscope électronique.

On peut affirmer que les traces de fission sont très stables à 20° C, dans l'échelle des temps géologiques, cependant, J. BIGAZZI (25) a constaté un raccourcissement des traces au cours du temps. Il a trouvé une diminution moyenne de 1,5 μ en 300 10⁶ ans environ pour les traces dues à la fission spontanée de l'uranium.

Le fait que les minéraux conservent les traces dues aux fragments de fission au-delà de l'échelle des temps géologiques à la température de 20° C, a permis à FLEISCHER, PRICE



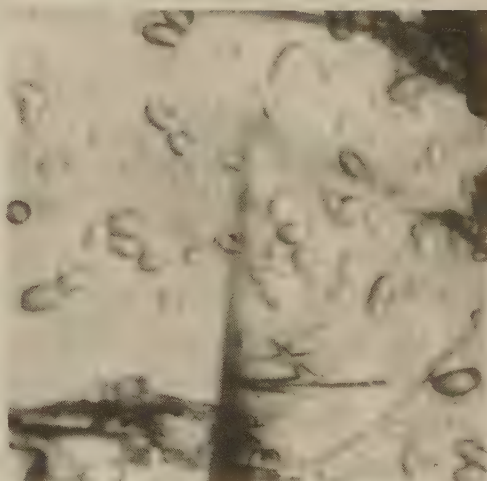
A 20μ



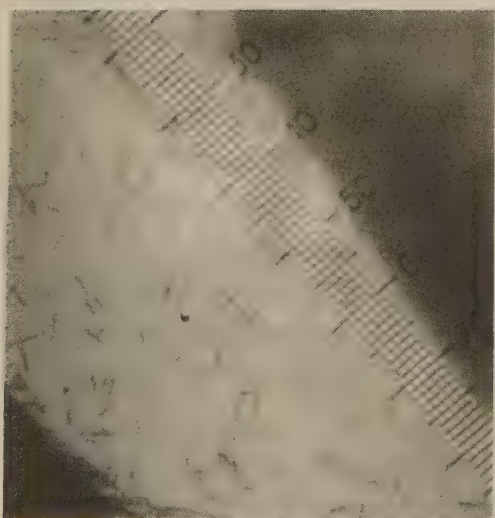
B 20μ



C 50μ



D 20μ



E 20μ

FIGURE 1 Photographie de dommages
révélés dans quelques miné-
raux:

- A Fission induite dans la calcite
- B Fission induite dans la muscovite
- C Inclusion d'uranium dans la muscovite
- D Fission spontanée dans l'obsidienne
- E Fission induite dans l'apatite

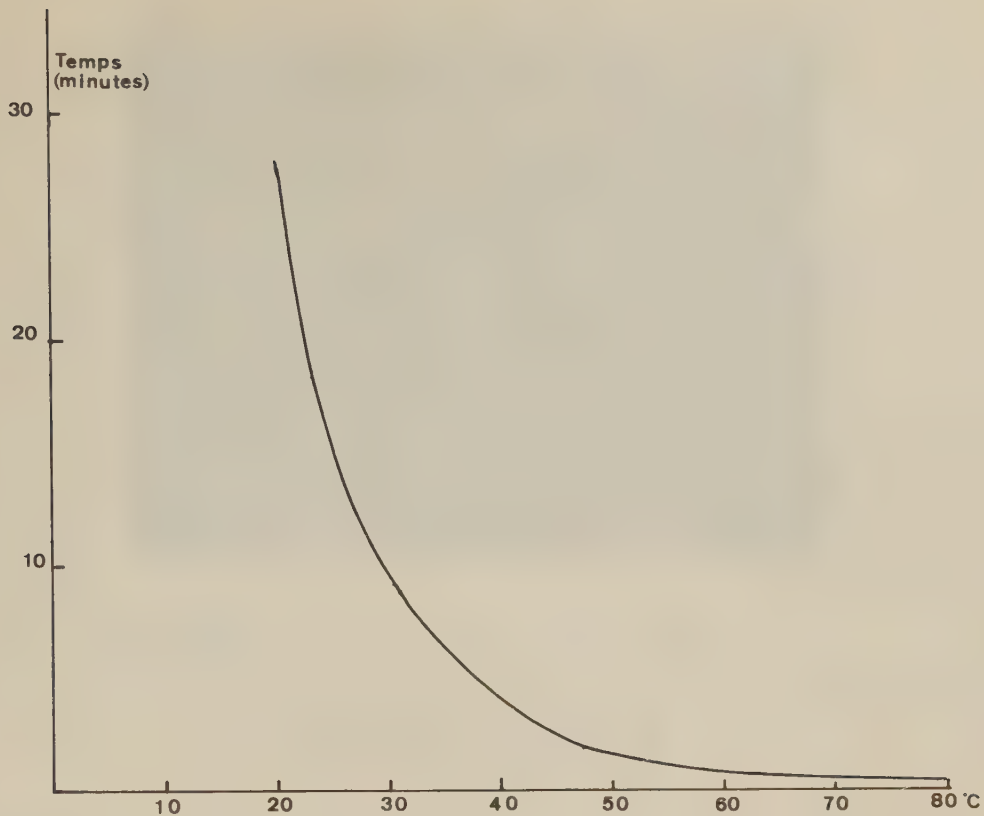
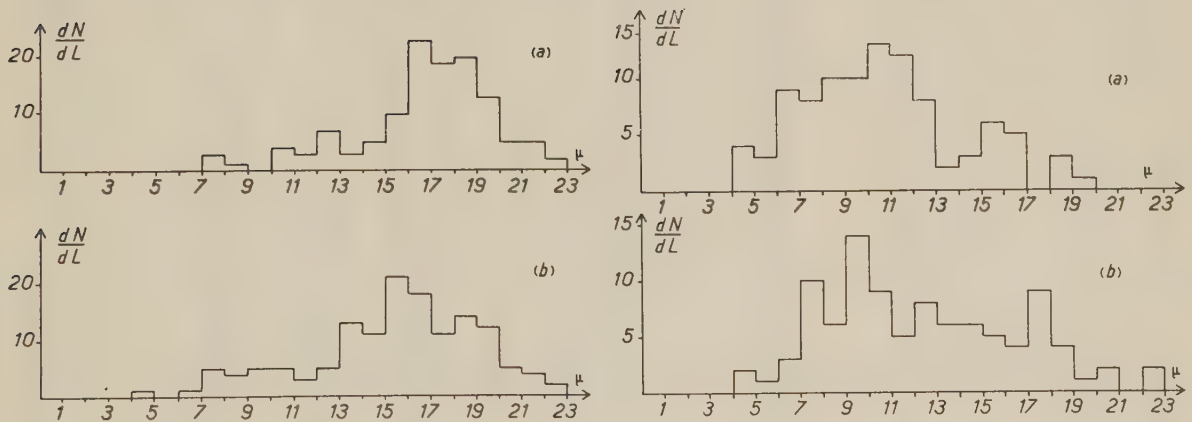


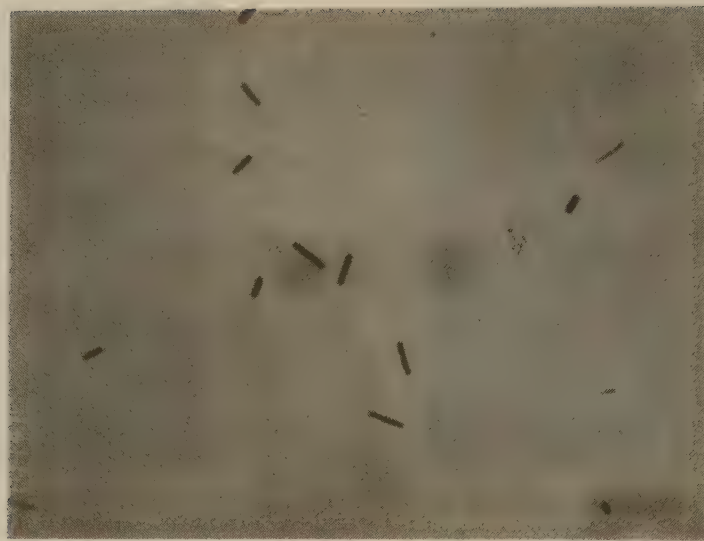
Figure 2 - Variation du temps d'attaque en fonction de la température pour la révélation de toutes les traces dans le mica muscovite (révélateur : HF 40 %)



Distribution des longueurs de traces fossiles (a) et de traces nouvelles (b) dans un plan interne de phlogopite.

Distribution des longueurs de traces fossiles (a) et de traces nouvelles (b) sur un plan de clivage externe de muscovite.

Figure 3



20 μ

Figure 4 - Traces produites par les fragments de fission
du californium 252 dans la muscovite

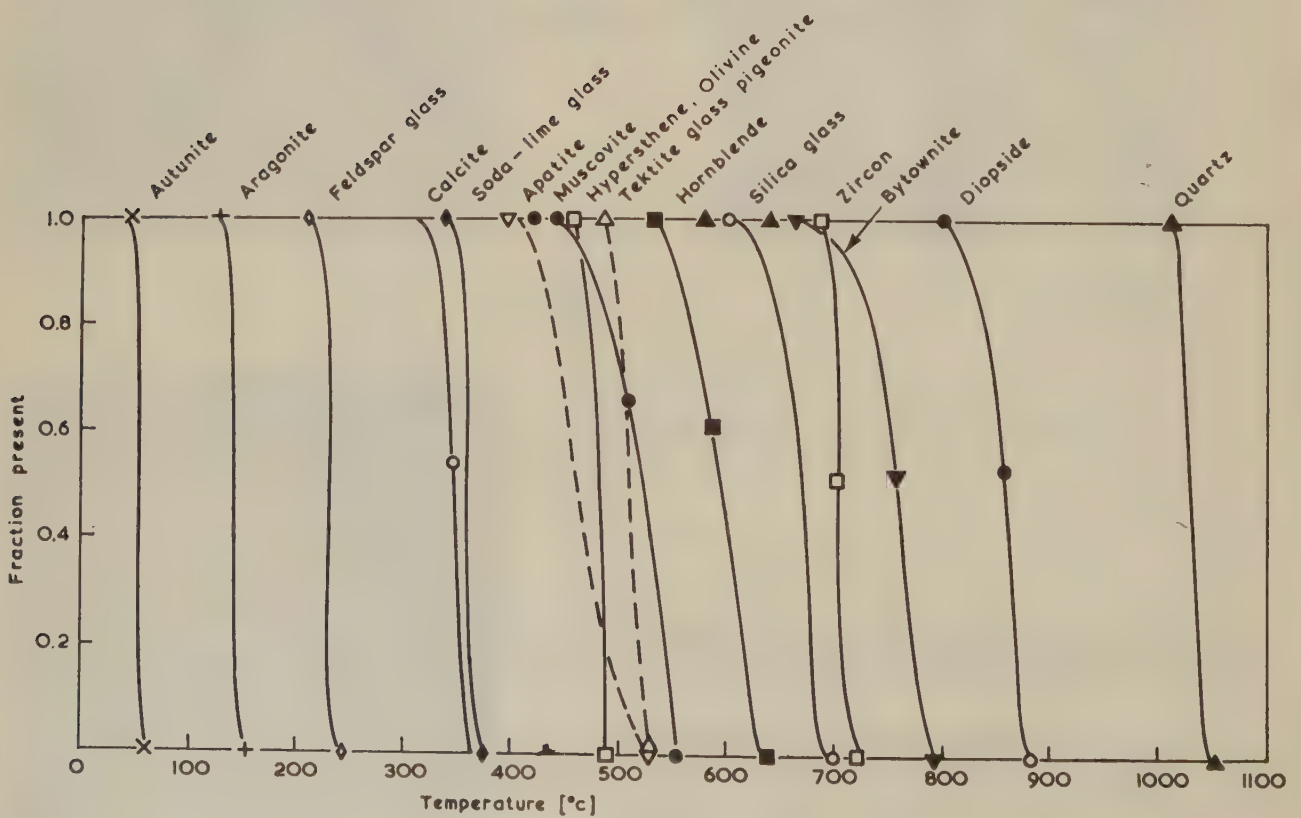


Figure 5 - Track fading after 1 hour anneal

et WALKER de proposer une méthode de datation utilisant la fission spontanée des éléments fissiles naturels (14). Quant elle ne permet pas de dater la formation d'une roche, cette méthode conduit, au minimum, à la datation du dernier métamorphisme qu'elle a subi (30). Ces traces, dites traces fossiles, ont été mises en évidence et le principe de la méthode préconisée par FLEISCHER, PRICE et WALKER a donc, dès lors, été établi (14).

Nous venons de voir que l'existence de traces dans les minéraux isolants est un phénomène très répandu dans la nature. Le fait que ces traces soient facilement révélables dans les silicates nous donne une indication sur les possibilités d'application en géochronologie. En plus des silicates, de la calcite, du zircon, de l'apatite, d'autres minéraux très communs présentent des traces de fission révélables.

La fission de l'uranium est la seule responsable des traces de fission dans les échantillons terrestres (14). En effet, en raison des différences de périodes, il faudrait que l'abondance du thorium 232 soit 10^5 fois supérieure à celle de l'uranium pour que le thorium 232 donne naissance à une densité de traces égale à celle due à l'uranium. On peut aussi négliger la composante due à la spallation induite sur les éléments très lourds des détecteurs naturels terrestres par le rayonnement cosmique de haute énergie.

Dans les chapitres et annexes qui suivent, nous essayerons de mieux décrire la méthode des traces de fission et de présenter quelques contributions à son application en géochronologie.

TABLEAU 3

TEMPERATURE (°C)	REDUCTION DU NOMBRE DE TRACES A MOINS DE 4 %
0	$1 \cdot 10^{11}$ ans
20	$3 \cdot 10^{10}$ ans
50	$3 \cdot 10^8$ ans
100	$8 \cdot 10^5$ ans
150	$7 \cdot 10^3$ ans
200	$2 \cdot 10^2$ ans
300	1 an
400	$3 \cdot 10^{-2}$ an
500	$2 \cdot 10^{-3}$ an
600	$2 \cdot 10^{-4}$ an

CHAPITRE II

I. - INTRODUCTION.

On a vu que les traces étaient dues à l'ionisation du détecteur par la particule chargée qui le traverse. L'ionisation est une fonction du carré de la charge de la particule responsable de la trace. Par ailleurs, pour qu'une trace soit visible au microscope optique il est nécessaire que son diamètre soit plus grand que $0,4\mu$. Pour plus de commodité, nous appellerons ce diamètre minimum : diamètre seuil. D'autre part, le diamètre de la trace est fonction de la charge de la particule (29) ou du degré de recuit du cristal.

Si dans les verres et les plastiques la variation du diamètre peut être suivie sans grande difficulté (21,29), dans la muscovite, il n'est pas possible d'étudier la répartition des charges des fragments de fission par la variation du diamètre des traces car, pour l'ensemble de ces traces, à partir du moment où elles sont visibles, c'est-à-dire lorsqu'elles ont atteint le rayon seuil, même une attaque plus poussée, qui fait changer la couleur de la trace, n'introduit pas de variation mesurable du diamètre. On peut donc considérer que le rayon seuil est une constante et que le temps de révélation nécessaire à chaque trace pour atteindre ce rayon seuil est fonction de la charge de la particule. Par conséquent, les traces dues à des ions très lourds doivent être plus facilement attaquables que celles dues à des ions plus légers.

STORZER et WAGNER (21) ont montré que dans les verres, pour des conditions identiques de révélation, il y a une réduction du diamètre des traces lorsque l'échantillon a été chauffé à une température suffisamment élevée. Dans la muscovite, chauffée à des températures supérieures à 100°C pendant 1 heure, on ne constate pas de réduction de diamètre, ou, s'il y en a une, elle n'est pas mesurable. Par contre, on doit constater une augmentation du temps nécessaire à la révélation de la trace, à température et concentration constantes du révélateur.

La réduction du diamètre, dans le cas des verres, peut être telle que la trace ne sera plus révélabile; de même, dans la muscovite, certaines traces ne seront plus révélabiles même si l'on augmente considérablement le temps de révélation. On sera donc en présence d'une réduction de la densité de traces, bien que toutes les traces latentes soient encore visibles au microscope électronique.

Pour mieux connaître la structure d'une trace latente, les mécanismes thermodynamiques de changement de cette structure et les conséquences qui en découlent pour l'histoire des minéraux susceptibles d'enregistrer des traces, nous avons étudié la cinétique de révélation et d'effacement des traces de fission dans le mica muscovite.

Nous verrons successivement l'effet des variations de concentration du révélateur et l'effet de la variations de la température d'attaque sur le temps d'apparition de la première trace et sur le temps de révélation de toutes les traces. Nous étudierons aussi ces mêmes variations pour des micas chauffés à différentes températures.

II. - VARIATION DES PARAMETRES DE REVELATION.

Cette étude a pour but de déterminer les conditions d'attaque (concentration et température du révélateur) pour lesquelles la révélation des traces est la meilleure, sans modification de la régularité de la surface du mica et sans diminution sensible de la densité de traces. D'autre part, elle nous permettra de choisir des conditions de révélation pour lesquelles l'intervalle de temps séparant l'apparition de la première trace et l'apparition de la dernière trace soit le plus convenable pour qu'on puisse suivre la vitesse d'apparition des traces au cours d'une révélation de plus en plus poussée. En effet, pour des conditions données de révélation, toutes les traces de fission n'apparaissent pas en même temps (Figure 6). Pour établir la courbe donnée dans cette figure, nous avons utilisé un mica muscovite de Rhodésie dont on a effacé les traces fossiles par chauffage à 600 °C pendant 1 heure et qu'on a ensuite irradié à la pile EL3 du Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay par un flux intégré de $3,9 \cdot 10^{15}$ neutrons thermiques/cm². Ce mica ayant une teneur en uranium de 0,04 ppm, la densité prévue de traces était $4,5 \cdot 10^3$ /cm². La révélation a été effectuée avec de l'acide fluorhydrique à 40 % à la température du laboratoire et les traces comptées toutes les deux minutes. On constate que, dans ces conditions, il s'écoule environ 25 minutes entre l'apparition de la première trace et la révélation totale des traces.

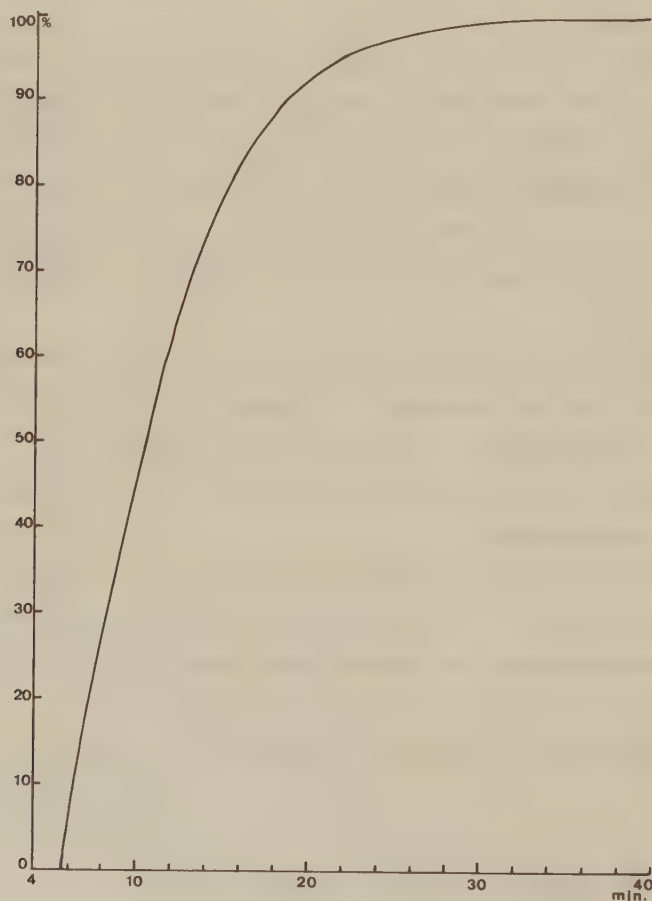


Figure 6 - Apparition des traces dans le mica muscovite en fonction du temps de révélation (conditions de révélation : HF 40 %, température 20 °C)

On a pris l'hypothèse que la diffusion du réactif le long de l'axe de la trace se faisait instantanément et que, pour toutes les traces, l'attaque commence au même instant. Cette hypothèse n'est pas toujours valable, mais elle est utile pour comparer les taux d'attaque des traces aux taux d'attaque de la surface en admettant que, pour une concentration et une température du révélateur données, la réaction a une vitesse constante dans la direction du rayon. Bien que la couleur de la trace, vue au microscope optique, suggère que le rayon est égal à $0,3\mu$, on a pris, dans la suite de ce travail une valeur de $0,4\mu$ qui rend compte des irrégularités d'attaque non visible au microscope optique.

On a donc fait varier les différents paramètres de révélation et, sur une surface de 1 cm^2 , suivi le temps d'apparition de la première trace et le temps nécessaire à la révélation de toutes les traces. On a, par ailleurs, attaqué le même mica non irradié pour suivre l'attaque de la surface.

a) Variation de la concentration de l'acide fluorhydrique à 20°C

La courbe 1 de la figure 7 donne les variations du temps d'apparition de la première trace en fonction de la concentration de l'acide fluorhydrique et la courbe 2 représente le même phénomène pour l'apparition de toutes les traces. La courbe 3 représente la différence entre la courbe 2 et la courbe 1. Cette courbe devrait, sur toute sa longueur, être intermédiaire entre les courbes 1 et 2. On constate que, pour les faibles concentrations, cette courbe se déforme, indiquant que les premières traces révélées n'ont pas le même comportement vis à vis de la variation de la concentration.

Si par ailleurs, on utilise ces résultats et l'hypothèse précédemment émise sur le mode d'attaque des traces pour calculer les taux d'attaque pour les premières et pour les dernières traces qui apparaissent, on obtient le tableau 4 dans lequel r_1 est le taux d'attaque de la première trace et r_2 le taux d'attaque de la dernière trace. Plus le rapport de ces deux taux d'attaque sera grand, plus il sera facile de suivre la cinétique de révélation d'une trace et par conséquent de mieux étudier le comportement physico-chimique des traces. La courbe 3 nous montre que, à 20°C , il faut nécessairement travailler à une concentration supérieure à 30% et le tableau 4 que la concentration de 40% est la meilleure, puisque le rapport r_1/r_2 , qui est presque constant jusqu'à 30%, est nettement supérieur pour une concentration de 40%.

TABLEAU 4

CONCENTRATION	r_1 μ/sec	r_2 μ/sec	r_1 / r_2
10 %	1/18.700	1/42.500	2,2
20 %	1/ 4.800	1/ 9.750	2,0
30 %	1/ 2.250	1/ 5.850	2,6
40 %	1/ 750	1/ 4.200	5,6

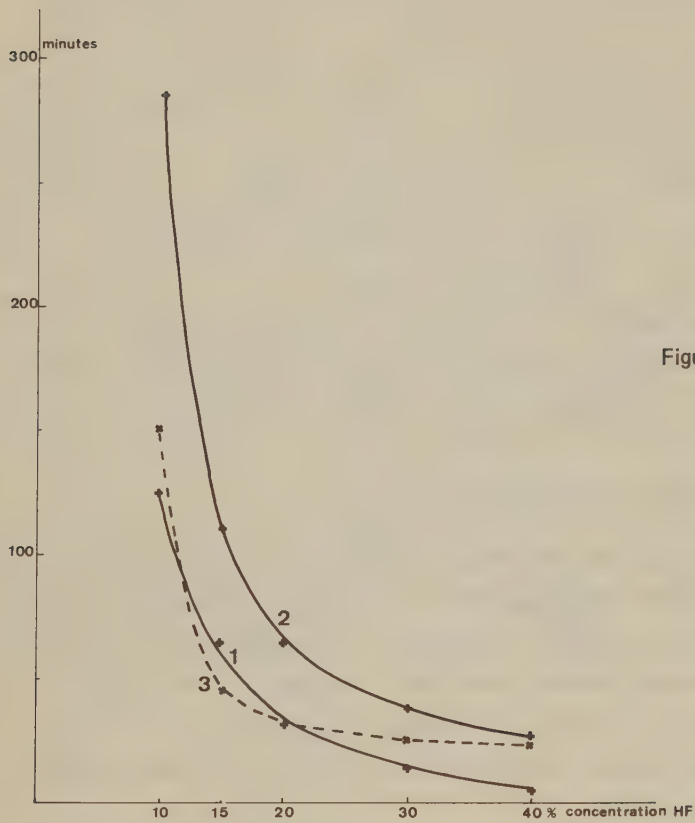


Figure 7 - Variation du temps d'apparition de la première trace (courbe 1) et de la révélation totale de toutes les traces (courbe 2) en fonction de la concentration de l'acide fluorhydrique utilisé comme révélateur dans le mica muscovite. La courbe 3 représente la différence entre la courbe 2 et la courbe 1.

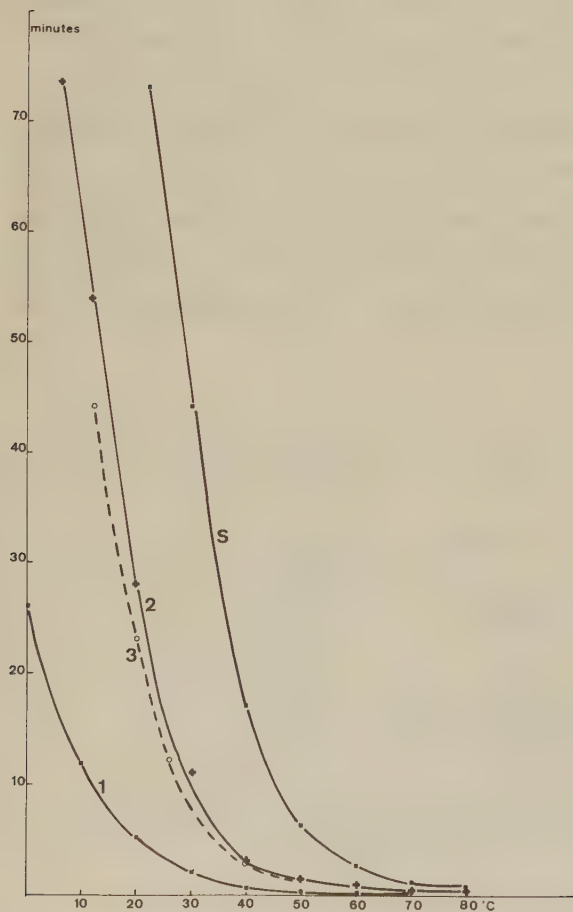


Figure 8 - Variation du temps d'apparition de la première trace (courbe 1) et de la révélation totale des traces (courbe 2) en fonction de la température du révélateur (HF 40%) dans le mica muscovite. La courbe 3 représente la différence entre la courbe 2 et la courbe 1. La courbe S représente la vitesse d'attaque de 1μ de la surface non endommagée du mica.

TABLEAU 5

Température	Taux d'attaque			Rapport avec S		r_1 / r_2
	r_1 μ/sec	r_2 μ/sec	r_s μ/sec	r_1/r_s	r_2/r_s	
0°C	1/3880	1/18800	-	-	-	4,8
10°C	1/1800	1/9000	-	-	-	5,0
20°C	1/ 750	1/4200	1/43000	57	10	5,6
30°C	1/ 300	1/1500	1/25500	85	17	5,0
40°C	1/ 87	1/ 450	1/10000	115	22	5,1
50°C	1/ 50	1/ 225	1/3300	66	14	4,5
60°C	1/ 35	1/ 130	1/1600	45	12	4,5
70°C	1/ 25	1/ 75	1/720	28	9	3,0
80°C	1/ 12	1/ 45	1/390	32	9	3,7

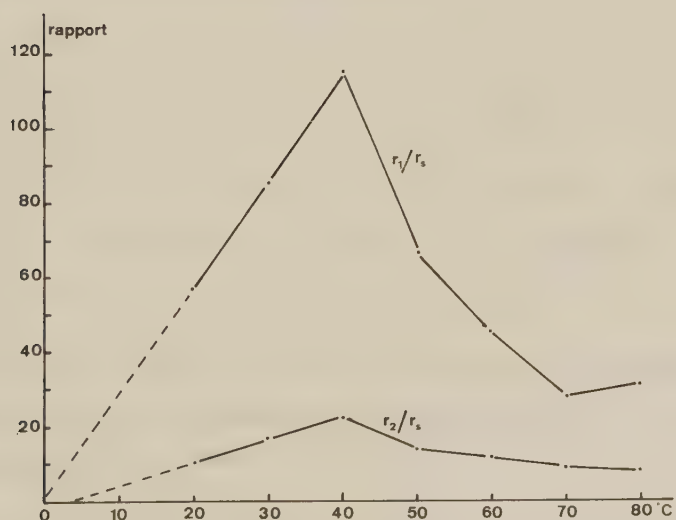


Figure 9 - Variations du rapport R_1/r_s et du rapport r_2/r_s en fonction de la température de révélation dans le mica muscovite (révélateur HF 40%) r_1 étant le taux d'attaque de la première trace, r_2 le taux d'attaque de la dernière trace et r_s le taux d'attaque de la surface non endommagée du mica.

b) Variation de la température à concentration constante (40%)

Les résultats expérimentaux sont donnés figure 8. On a fait varier la température de 0°C à 80°C. En plus du temps d'apparition de la première trace (courbe 1) et de celui d'apparition de la dernière trace (courbe 2) on a, à partir de 20°C suivi le taux d'attaque de la surface du mica non endommagé (courbe S) car il sera nécessaire, dans la suite de cette étude, de travailler dans des conditions où la surface du mica n'est pas trop attaquée. Comme dans la figure précédente, on a établi la courbe représentant la différence entre la courbe 2 et la courbe 1 (courbe 3). On peut voir que cette courbe 3 est intermédiaire de la courbe 2 et de la courbe 1 et que, par conséquent, les variations de température altèrent de la même façon les processus physico-chimiques de révélation de toutes les traces. Cependant, si, comme dans le cas précédent, on établit le tableau donnant les taux d'attaque de la première trace (r_1), de la dernière trace (r_2) et de la surface non endommagée du mica (r_s) (tableau 5), on constate que, alors que le rapport r_1/r_2 reste sensiblement constant jusqu'aux températures élevées (60°C), les rapports r_1/r_s et r_2/r_s ne sont pas constants, leurs variations étant corrélées comme le montre la figure 9. Lorsque ces rapports, à basses et à hautes températures; tendent vers l'unité, les traces se révèlent très mal. Pour les hautes températures (à partir de 30°C), l'écart de temps entre la révélation de la première trace et celle de la dernière trace est trop court pour le but que nous nous sommes fixé. Par conséquent, pour l'acide fluorhydrique à 40%, les meilleures conditions de révélation se trouvent à 20°C.

Par ailleurs, la figure 9 montre qu'il y a changement brusque de la vitesse d'attaque de la surface entre 40 et 50°C. Pour tenter d'expliquer ce changement, on a construit la figure 10 en portant en abscisse l'inverse de la température en degrés Kelvin et en ordonnées la vitesse d'attaque en 10^{-5} μ /sec) pour, d'une part, la révélation de la première trace (courbe 1), d'autre part, la révélation de la dernière trace (courbe 2) de la surface du mica non endommagée (courbe S.) On constate un parallélisme entre les trois courbes pour des températures de révélation inférieures à 40 °C ; pour les températures supérieures à 50°C, on a un parallélisme entre les courbe 1 et 2, mais, un changement de pente par rapport à la courbe S. Ceci peut indiquer qu'en dessous de 40°C la différence de vitesse d'attaque dans les trois cas n'est due qu'à une différence de concentration des ions actifs dans les deux types de traces, alors que, au-dessus de 50°C, il y aurait intervention d'ions possédant une autre énergie d'activation. On peut donc calculer, en utilisant l'équation d'ARRHENIUS, les énergies d'activation de révélation pour les deux parties de la courbe. Ce calcul donne 0,7 eV pour les défauts qui sont révélés à des températures inférieures à 40°C et 0,4 eV pour des défauts révélés à des températures supérieures à 50°C; ces deux sortes de défauts coexistant dans une même trace. L'importance relative des deux sortes de défauts ne peut être déterminée que par une étude de la cinétique d'effacement des traces. C'est pourquoi nous allons suivre la révélation progressive des traces dans les micas irradiés puis recuits à différentes températures.

III. - VARIATION DE LA TEMPERATURE DE RECUI.

Le mica a été chauffé à 600° C pendant 1 heure pour effacer toutes les traces fossiles, puis irradié par un flux intégré de $4 \cdot 10^{15}$ neutrons thermiques/cm² à la pile EL3, du Centre d'Etude Nucléaires de Saclay.

On a étudié l'apparition des traces en fonction du temps de révélation, les conditions de révélation étant, révélateur : acide fluorhydrique à 40 %, température : 20° C. Toutes les deux minutes, de 0 à 40 minutes, les traces étaient comptées. Ces mesures ont été effectuées sur des micas non recuits et recuits après irradiation pendant une heure à 50°, 80°, 100°, 150°, 250°, 340°, 450°, 510°, 540° et 600° C.

La figure 11 donne le nombre de traces révélées en fonction du temps de révélation pour les différentes températures de recuit. Le temps de révélation a été limité à 40 minutes ; en effet, la courbe représentant les micas non recuits (courbe 20° C) montre que pour un temps de révélation de 40 minutes toutes les traces sont révélées. Par ailleurs, si l'on pousse l'attaque plus longtemps, il commence à apparaître des figures de corrosion.

Sur cette figure on constate qu'un recuit à 50°C ne modifie pas le nombre total de traces révélées, ni la vitesse d'apparition des traces. Par contre, dès que le mica a été recuit à 80°C on constate une diminution du nombre total des traces révélées sans qu'il y ait un retard appréciable dans l'apparition de la première trace. A partir de 450°C, il existe un retard important dans le temps d'apparition de la première trace et le nombre total de traces révélées diminue beaucoup plus rapidement.

De ces résultats on peut tirer deux sortes de conclusions :

1) la réduction du nombre total de traces révélées qui est plus grande plus la température de recuit est élevée montre qu'il y a certainement guérison totale d'une partie des traces ;

2) le retard dans l'apparition de la première trace peut être lié à la disparition préférentielle des traces dues à des particules de charges plus faible. Ceci indiquerait que la cinétique d'attaque de la trace varie avec la charge du fragment qui l'a produite et dépend de l'énergie d'activation des défauts qui donnent lieu aux traces.

En portant en ordonnées la valeur de $100 - \rho'_d$, ρ'_d étant le nombre de traces disparues et en abscisses les différentes températures de recuit (pour un temps de recuit constant de 1 heure) et pour les différents temps de révélation (Figure 12) on obtient une famille de courbes qui montre :

- a) pour un temps de révélation de 10 minutes, les traces susceptibles d'être révélées disparaissent dès que le mica est chauffé à 250°C, la disparition étant très rapide entre 20 et 100° C ;
- b) à partir de 14 minutes de révélation, la forme des courbes n'est plus la même; on peut discerner trois zones : une décroissance rapide jusqu'à une température de recuit d'environ 100°C, suivi d'un plateau jusque vers 340° C, puis une nouvelle décroissance

rapide. Cette évolution est de plus en plus marquée plus le temps de révélation est grand ;

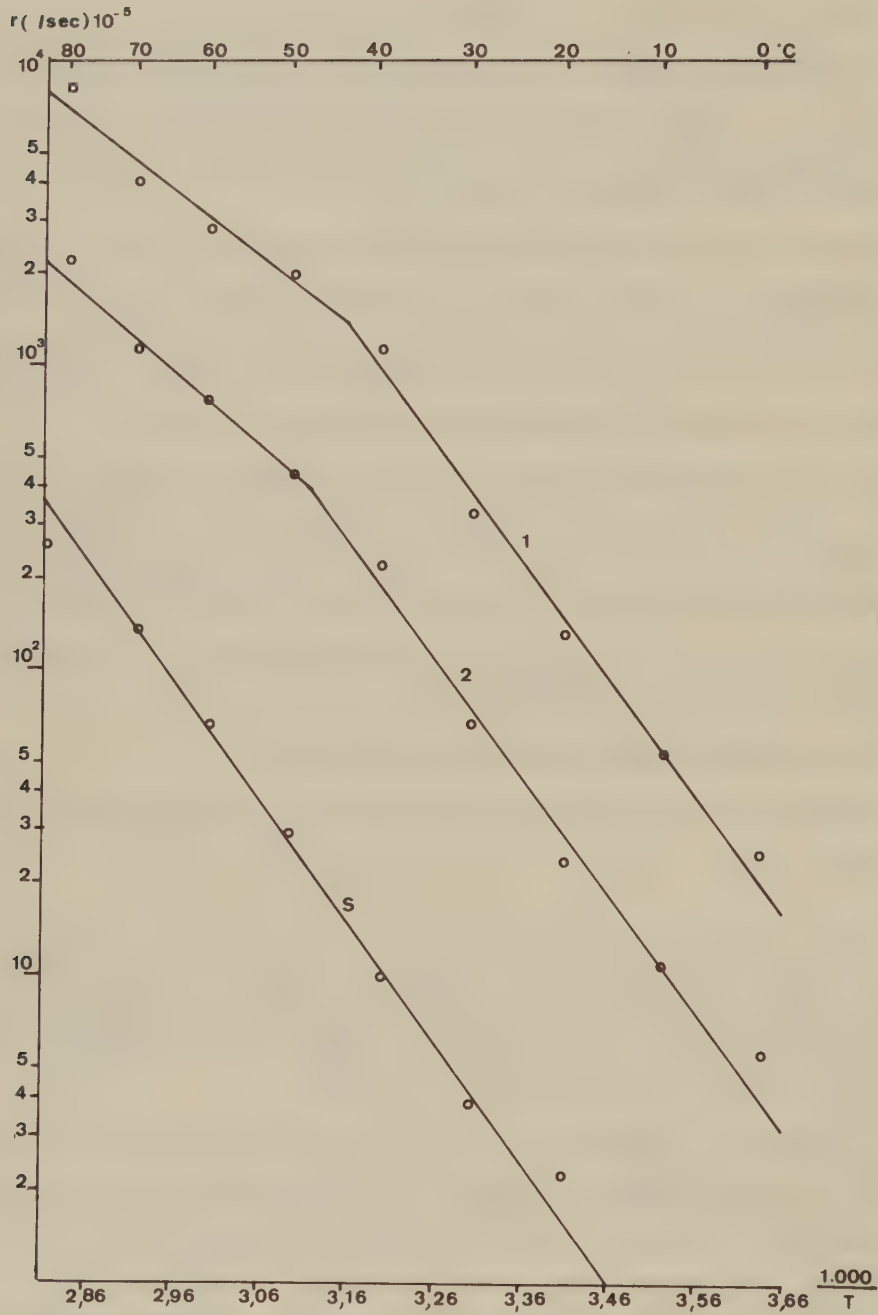


Figure 10 - Variation du taux d'attaque moyen de la première trace (courbe 1) du taux d'attaque de la dernière trace (courbe 2) et de la surface du mica (courbe S) en fonction de l'inverse de la température absolue de révélation (Révélateur HF 40%)

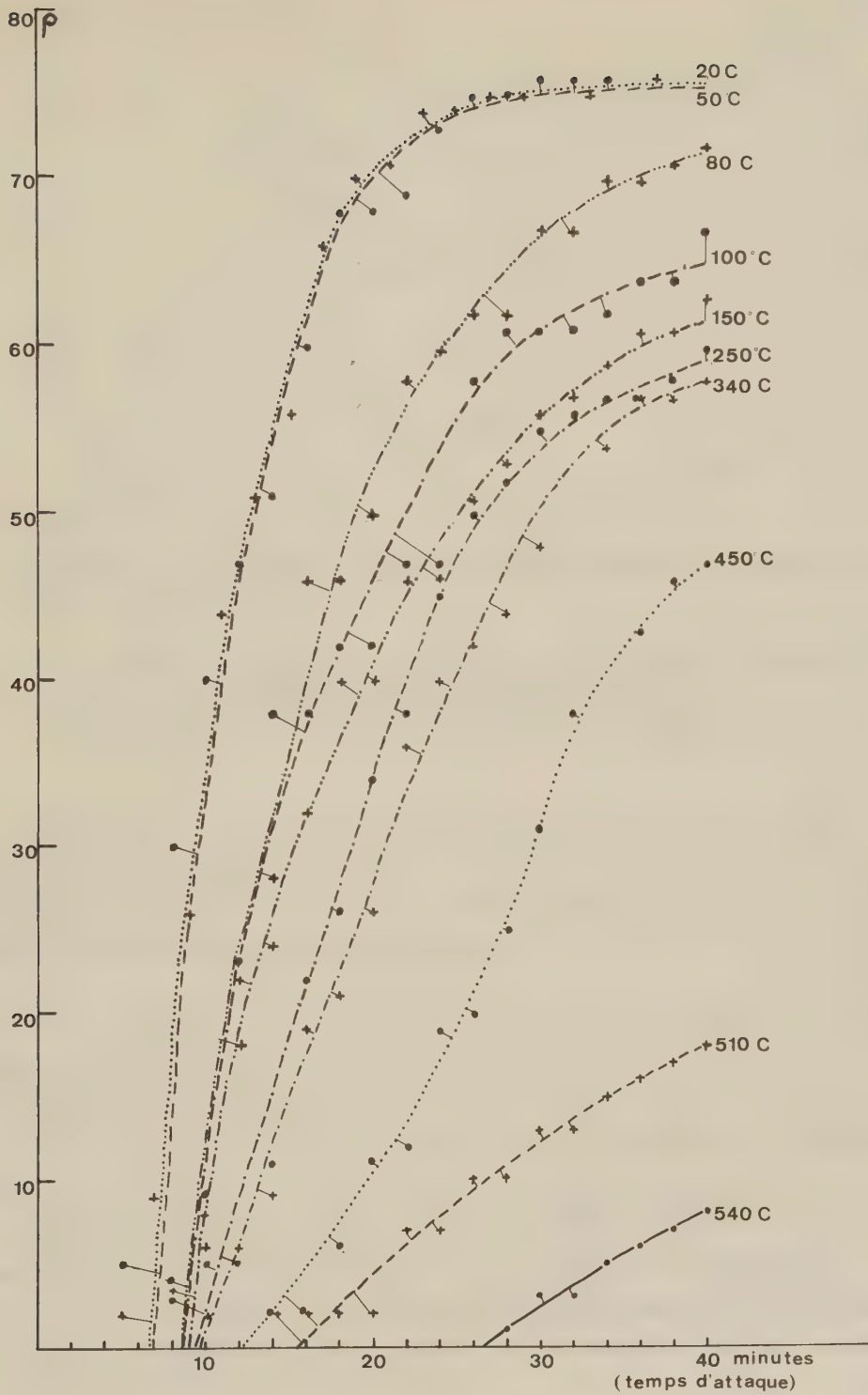


Figure 11 - Variation du nombre de traces révélées en fonction du temps de révélation pour les différentes températures de recuit (révélateur HF 40%, température de révélation 20 °C) dans le mica muscovite.

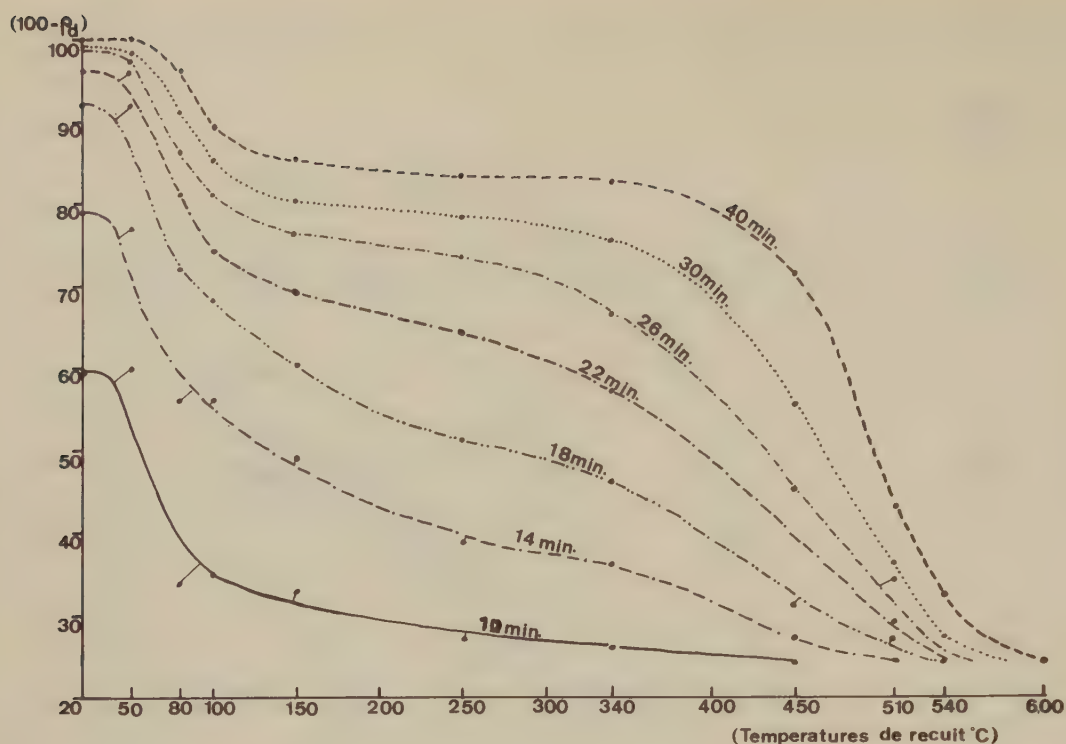


Figure 12 - Variation de $100 - \rho_d$ en fonction des différentes températures de recuit pour les différents temps de révélation, $100 - \rho_d$ étant le nombre de traces disparues dans le mica muscovite (révélateur HF 40%).

c) alors que pour un temps de révélation de 14 minutes la plus grande partie des traces susceptibles d'être révélées disparaît pour les basses températures de recuit, la situation est inversée pour la courbe obtenue avec 40 minutes de révélation où la majorité des traces révélables disparaît brusquement pour des températures de recuit supérieure à 340°C.

La figure 13 a été obtenue en séparant en deux zones les courbes de la figure 12, la séparation se trouvant aux environs de la température de recuit de 250°C qui marque le point d'inflexion de ces courbes. Pour chaque temps de révélation porté en abscisses, on a donné, en ordonnées, le nombre de traces révélées pour des températures de recuit inférieures à 250°C pour la courbe 1 et supérieures à 250°C pour la courbe 2. La courbe 3 représente le nombre total de traces révélées pour chaque temps de révélation. Ces courbes montrent que l'on est en présence de deux types de défauts et que la guérison d'un des types de défauts n'entraîne pas forcément la guérison définitive de la trace.

Ceci confirme que l'on a affaire à deux groupes d'énergie d'activation que l'on peut tenter de calculer.

BROWN et FLETCHER (29) ont proposé un modèle simple pour expliquer les recombinaisons au cours des recuits pour un cristal monoatomique, ce modèle a ensuite été étendu par DE MAINE (30) à des systèmes plus complexes. La fréquence de saut de l'interstitiel vers la lacune est donnée par :

$$\nu = \nu_0 e^{-E/KT}$$

où ν_0 est la fréquence de vibration atomique du réseau;

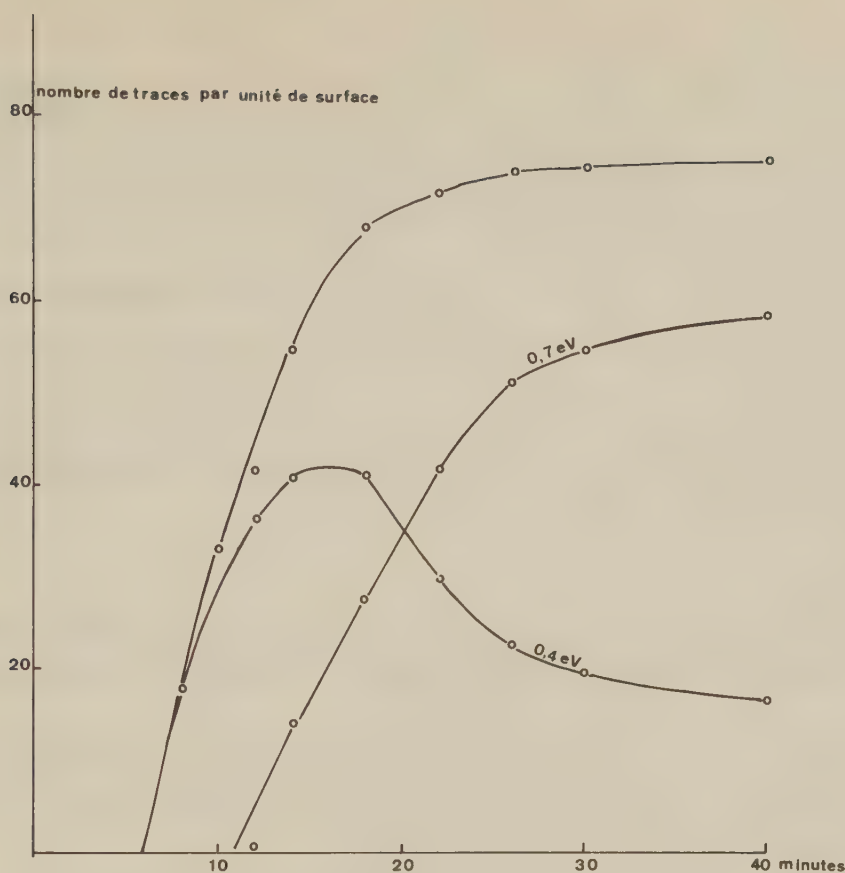


Figure 13

K est la constante de Boltzmann ,

E est l'énergie d'activation,

T est la température de recuit, en degré Kelvin.

Dans le cas des traces, le recuit peut être exprimé par :

$$\rho_t = \rho_0 e^{-\nu t}$$

où ρ_0 est le nombre de traces latentes et

ρ_t est le nombre de traces restant après un recuit à une température T pendant un temps t.

Ces deux équations nous permettent de calculer les énergies d'activation (31) en traitant séparément les deux zones de décroissance rapide pour l'ensemble des isochrones.

Dans ces conditions, nous obtenons, pour la première zone (entre 50 et 150°C) une énergie moyenne d'activation égale à 0,46 eV et pour la deuxième zone (entre 340 et 600 °C) une énergie moyenne d'activation égale à 0,73 eV.

Si maintenant on n'utilise pour ces calculs que l'isochrone de 40 minutes, on obtient 0,80 eV pour la zone de 50 à 150°C et 1,25 eV pour la zone entre 340 et 600°C comme énergie plus probable d'activation.

D'après ces résultats, les basses énergies d'activation caractérisent 23% des traces tandis que les hautes énergies d'activation caractérisent 77% des traces.

On peut aussi calculer la vie moyenne des traces dans le mica muscovite, à 20°C. Cette vie moyenne est $7 \cdot 10^9$ ans pour les traces de 1,25 eV.

Si un échantillon ne comportait que des traces de 1,25eV, après 10^9 ans, il présenterait donc une réduction de 10% environ du nombre de traces. Ce n'est que pour des échantillons d'âge inférieur à 600 millions d'années que la diminution du nombre de traces serait négligeable. Cependant, il n'y a que 77% des traces qui sont des traces de haute énergie d'activation; 23% des traces qui ont une énergie d'activation de 0,80 eV ont une vie moyenne de 10^3 ans. Donc, dans un échantillon de 10^9 ans, on doit constater déjà une diminution du nombre total de traces d'environ 30%.

En effet, BIGAZZI (25) a constaté, pour des échantillons de 500 millions d'années, une réduction de longueur moyenne de l'ordre de 10%. Pour des muscovites ayant environ 1 milliard d'années, la différence d'âge constatée par cet auteur est de l'ordre de 20%.

Les résultats calculés sont donc en bon accord avec les valeurs expérimentales, la vie moyenne de $7 \cdot 10^9$ ans peut donc être acceptée pour les traces de fission de haute énergie d'activation dans le mica muscovite.

IV. - CONCLUSIONS.

Dans ce chapitre, nous avons tout d'abord établi les meilleures conditions de révélation pour étudier la cinétique de révélation et d'effacement des traces de fission dans le mica muscovite.

Nous avons aussi pu montrer qu'il existe deux sortes de traces de fission caractérisées par l'importance relative de deux types de défauts, ces deux sortes de traces ont des vies moyennes différentes : 10^3 ans et 7×10^9 ans.

Par ailleurs, nous avons vu que le recuit retarde l'apparition des premières traces et modifie la vitesse de révélation, ce qui doit permettre d'estimer, qualitativement, si un échantillon de roche que l'on veut dater a été chauffé ou non.

De plus, on a établi qu'un recuit, même à une température aussi faible que 80°C pendant 1 heure, donne une diminution du nombre total des traces d'environ 5% et que pour 150°C, cette diminution atteint 22%.

Ces différents résultats vont nous permettre, dans le chapitre suivant, de tenter d'établir une méthode de correction d'âge pour les minéraux ayant subi un thermométamorphisme.

CHAPITRE III

I. - INTRODUCTION

Nous avons vu, dans le chapitre précédent (Figure 11) qu'il y a une relation entre le temps de révélation nécessaire à l'apparition de la première trace, le pourcentage de traces révélables et la température à laquelle le mica muscovite a été chauffé pendant 1 heure. Le tableau 6 résume ces résultats, ainsi que la figure 14.

TABLEAU 6

Température de recuit (1 heure)	Temps de révélation pour l'apparition de la première trace.	% de traces révélables en 40 minutes
20°C	5 à 7 minutes	100
50°C	5 à 7 minutes	100
80°C	8 à 10 minutes	94
100°C	8 à 10 minutes	86
150°C	8 à 10 minutes	79
250°C	8 à 10 minutes	77
340°C	9 à 11 minutes	76
450°C	12 à 14 minutes	62
510°C	14 à 18 minutes	25
540°C	28 à 31 minutes	9

On pourrait, en déterminant le temps d'apparition de la première trace et le nombre total de traces après 40 minutes de révélation, effectuer une correction grossière de l'âge de l'échantillon. Toutefois, les valeurs du tableau 6 nous montrent l'imprécision de cette méthode. En effet, jusqu'à une température de chauffe de 250°C, qui introduit déjà une variation de densité de traces de 23%, le temps d'apparition de la première trace est peu précis et ne permet pas de trouver la température à laquelle le mica a été chauffé pendant 1 heure.

II. - ABAQUE DE CORRECTION.

Pour préciser cette possibilité de correction et remonter à la température exacte à laquelle le mica a été chauffé, donc à la densité résiduelle de traces, nous avons construit l'abaque de la figure 15 en utilisant nos résultats expérimentaux et en considérant que, pour le mica non chauffé, 100 % des traces sont révélées en 40 minutes.

Cette abaque donne pour les différents temps de révélation le pourcentage de traces révélées en fonction de la température à laquelle le mica a été chauffé.

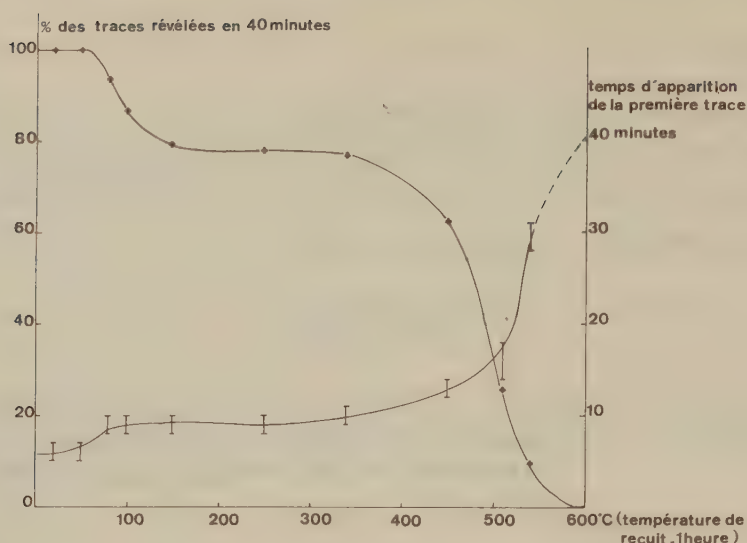


Figure 14 - Courbe 1, taux de disparition (en %) des traces en fonction de la température de recuit pour une heure de chauffe.
Courbe 2, variation du temps d'apparition de la première trace en fonction de la température de recuit.

On sait que si un mica a été chauffé, par exemple à 300°C pendant 1 heure, on ne pourra mettre en évidence, au bout de 40 minutes de révélation, que environ 77% des traces initiales

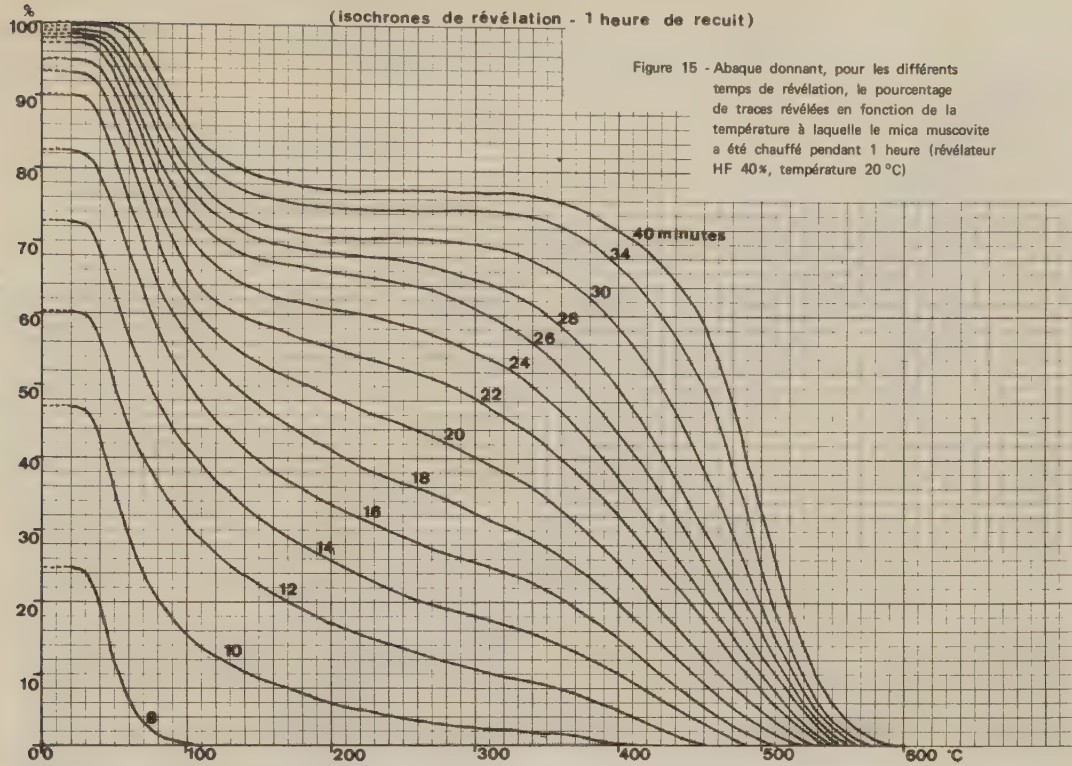
Partant de cette valeur, les pourcentages de traces révélées pour les différents temps de révélation, par rapport au mica non chauffé, doivent, par la construction même de l'abaque, se trouver sur la perpendiculaire à l'axe des x aboutissant à 300° C. Cependant, lorsqu'on a un échantillon de roche, on ne connaît pas son histoire thermique, on ne connaît donc pas la température à laquelle il a été chauffé ni la durée de ce chauffage, on ne sait par conséquent pas le pourcentage de traces révélées en 40 minutes. On est donc obligé de considérer que la révélation en 40 minutes donne 100 % des traces révélables. Les pourcentages de traces révélées au bout de chaque temps de révélation portés sur l'abaque donnent alors une courbe qui devrait recouper l'axe des x au niveau d'une température qui n'est pas la température à laquelle le mica a été chauffé pendant son histoire géologique mais définit une température équivalente à 1 heure de recuit.

A partir de cette température équivalente, en remontant à la courbe de révélation de 40 minutes de l'abaque, on trouve une valeur qui doit être le pourcentage de traces restant dans l'échantillon après une telle chauffe. La connaissance de ce pourcentage doit nous permettre de calculer le nombre de traces que l'on aurait dû mettre en évidence si l'échantillon n'avait pas été chauffé, par conséquent, connaissant sa teneur en uranium, de calculer son âge.

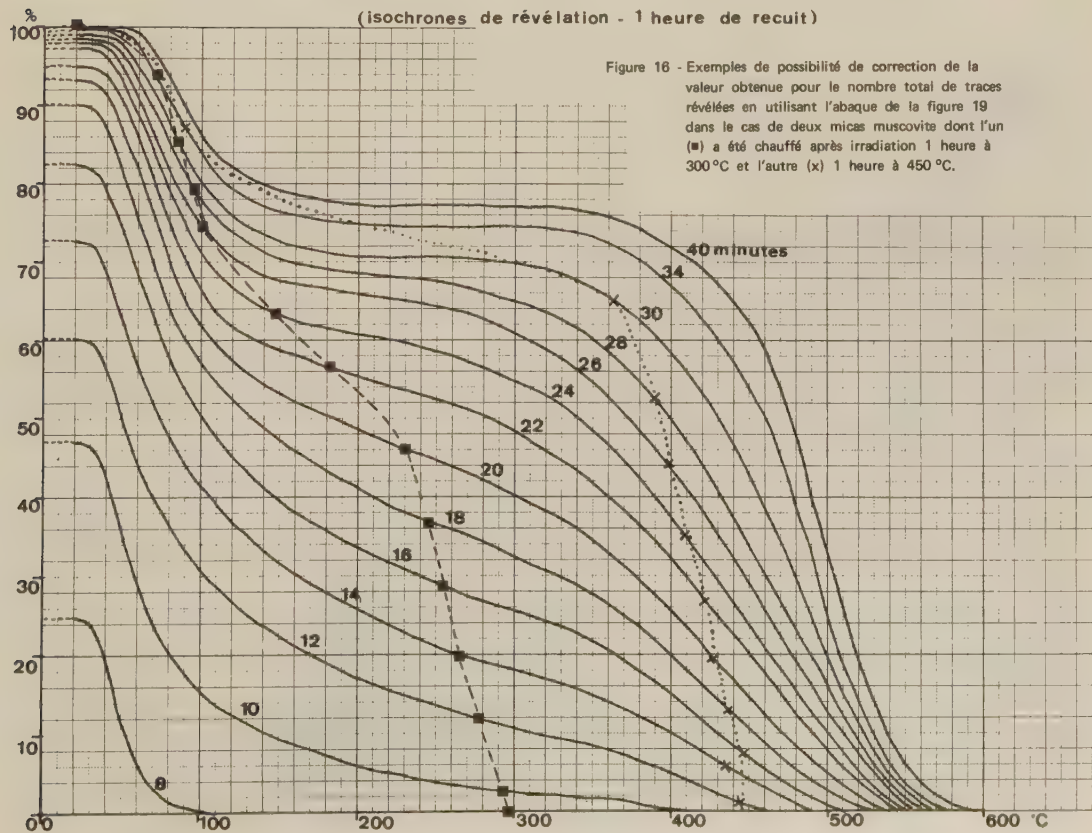
III. - VERIFICATION EXPERIMENTALE.

Pour vérifier cette hypothèse, nous avons irradié des micas muscovite dont nous avons mesuré le nombre de traces total après 40 minutes de révélation. Nous avons recuit ces échantillons, les uns pendant 1 heure à 300°C, les autres pendant 1 heure à 450°C. Nous

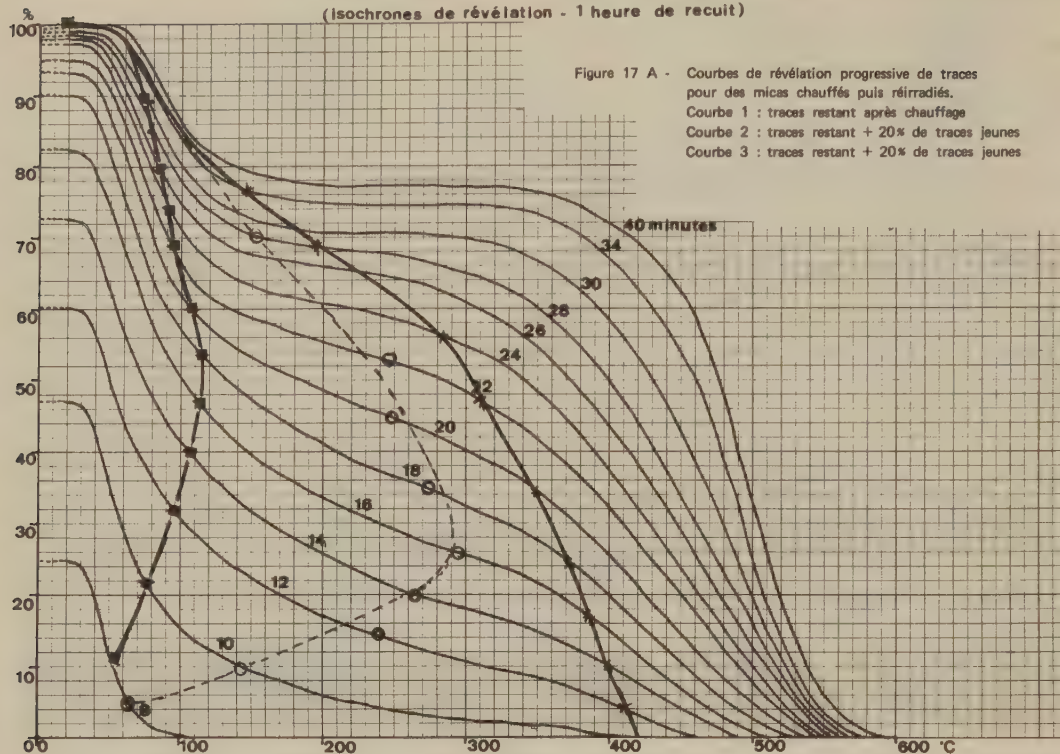
ABaque POUR CORRECTION D'AGE DES MUSCOVITES
(isochrones de révélation - 1 heure de recuit)



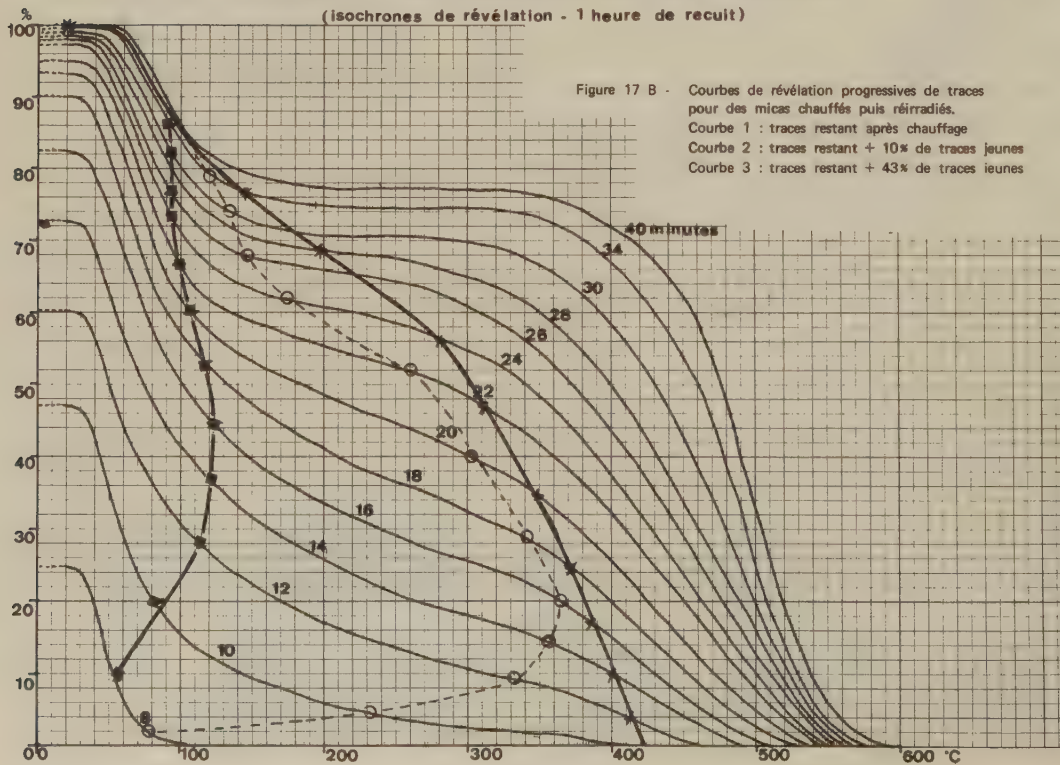
ABaque POUR CORRECTION D'AGE DES MUSCOVITES
(isochrones de révélation - 1 heure de recuit)



ABaque POUR CORRECTION D'AGE DES MUSCOVITES
(isochrones de révélation - 1 heure de recuit)



ABaque POUR CORRECTION D'AGE DES MUSCOVITES
(isochrones de révélation - 1 heure de recuit)



avons ensuite effectués des mesures de densité de traces pour différents temps de révélation. Sur la figure 16, nous avons reporté sur l'abaque, pour les deux échantillons (courbes en pointillé et en tireté) les pourcentages du nombre de traces révélées pour chaque temps de révélation par rapport au nombre de traces révélées en 40 minutes, en normalisant à 100 la valeur trouvée après 40 minutes de révélation. Le point d'intersection de ces courbes avec l'axe des x doit donner la température à laquelle l'échantillon a été recuit pendant 1 heure.

En remontant de la température ainsi déterminée jusqu'à l'intersection avec la courbe de révélation pour 40 minutes, on détermine le pourcentage de traces qui ont été révélées par rapport au nombre total des traces qui existaient avant le recuit.

Le tableau 7 donne une comparaison entre les résultats expérimentaux et les résultats obtenus à partir des abaques.

Il montre un très bon accord, tant pour les températures de recuit que l'on peut ainsi déterminer que pour les pourcentages de traces ayant disparu.

TABLEAU 7

Résultats expérimentaux			Résultats calculés d'après l'abaque	
Température de recuit (1 h)	Nombre de traces révélées en 40 minutes	% de traces révélées en 40 minutes	Température	% de traces
Non recuit	$4,4 \cdot 10^3/\text{cm}^2$	100	-	-
300°C	$3,4 \cdot 10^3/\text{cm}^2$	77	290°C	77
450°C	$2,7 \cdot 10^3/\text{cm}^2$	62	438°C	65

Cependant, les micas que nous venons d'étudier sont des micas dont on a révélé les traces immédiatement après le chauffage et l'on doit, en vue d'une application à la géochronologie, envisager la possibilité d'un réchauffement ancien, ayant effacé partiellement les traces fossiles, puis suivi d'un nouvel enregistrement de traces jeunes qui se révéleront de la même façon que celles d'un mica non chauffé.

Pour évaluer l'importance relative de ce phénomène, nous avons calculé les déformations qui pouvaient apparaître dans une courbe de révélation progressive en prenant comme base une courbe quelconque de révélation d'un mica chauffé. A partir de cette courbe, en considérant qu'après le chauffage à une température équivalente à 420°C pendant 1 heure, certains pourcentages de traces nouvelles étaient apparus, nous avons construit les courbes des figures 17, A et B.

Sur ces deux figures, la courbe 1 est la courbe de référence; sur la figure 17 A, la courbe 2 correspond à la révélation progressive du même mica si, après réchauffement, 20% de traces jeunes ont été enregistrées; la courbe 3 correspond à 50% de traces jeunes. Sur la figure 17 B, la courbe 2 représente une contribution de 10% de traces jeunes et la

courbe 3 une contribution de 43% de traces jeunes.

On peut donc, à partir d'une courbe de révélation progressive qui présenterait une déformation analogue à celle des courbes que nous venons de calculer, estimer une date approximative de fin du réchauffement.

CHAPITRE IV

I. - APPLICATION DE LA METHODE DE CORRECTION A DES MICAS MUSCOVITE DE DIVERSES ORIGINES.

Nous avons étudié 12 micas muscovite de diverses origines qui avaient été préalablement datés ou non par les traces et par d'autres méthodes de datation.

Le tableau 8 donne l'origine de ces micas et les diverses dates obtenues jusqu'à présent.

Dans une première phase, nous avons étudié les quatre premiers échantillons du tableau 8 qui avaient déjà été datés par la méthode des traces et par une autre méthode. On voit que si pour les deux premiers échantillons (A et B) les âges obtenus par deux méthodes différentes sont relativement en bon accord; pour les deux suivants (C et D) on constate que l'âge traces est nettement inférieur à l'âge trouvé soit par la méthode rubidium - strontium, soit par la méthode du plomb.

Pour pouvoir utiliser l'abaque de correction d'âge établie dans le chapitre précédent, nous avons effectué des révélations progressives de traces dans chacun de ces échantillons.

Dans le mica naturel, on révèle les traces par de l'acide fluorhydrique à 40% à 20°C en suivant l'apparition des traces de deux minutes en deux minutes jusqu'à 40 minutes de révélation. On normalise à 100 la densité de traces révélées en 40 minutes, on en déduit le pourcentage de traces révélées pour chaque temps de révélation. Les valeurs ainsi obtenues sont reportées sur l'abaque de la figure 15 (Chapitre III)

Les figures 18 (A,B,C,D) donnent les résultats pour chacun des échantillons.

Nous allons, dans un premier temps, étudier simplement les courbes de révélation et ce qu'elles impliquent, puis, ensuite, nous ferons une discussion générale de nos résultats.

La courbe de la figure 18 A est la courbe de révélation progressive du mica de Rhodésie pour lequel les âges traces et l'âge potassium/argon correspondent. On constate un léger décalage par rapport aux pourcentages que l'on obtiendrait pour un mica n'ayant subi aucun réchauffement, cependant, ce décalage qui donnerait une correction d'âge de 10% est dans la limite des erreurs expérimentales de la méthode des traces. L'âge que nous trouvons par les traces est égal à $528 \cdot 10^6$ ans après correction.

La courbe de la figure 18 B est la courbe de révélation progressive de la muscovite de Malakialina; cette courbe nous montre qu'un facteur de correction de 4 devrait être appliqué à l'âge trouvé par MAURETTE et al (19) par la méthode des traces. Cependant, ces derniers auteurs ont trouvé un âge traces correspondant à l'âge rubidium/strontium. Si l'on reprend leurs données numériques, tant pour le nombre de traces par centimètre carré que pour la teneur en uranium, et en utilisant l'équation de calcul d'âge par la méthode des traces (annexe I) nous trouvons un âge très différent de celui avancé par ces auteurs et égal à $15,5 \cdot 10^6$ ans. Celui-ci, corrigé par le facteur 4, donnerait un âge réel de $62 \cdot 10^6$ ans alors que l'âge rubidium/strontium est $514 \cdot 10^6$ ans.

Si l'on étudie la courbe de la figure 18 C représentant la révélation progressive des traces dans la muscovite d'Ampanobe, on trouve un facteur de correction de 1,85. L'âge traces trouvé par les auteurs cités précédemment est $310 \cdot 10^6$ ans; cependant, en utilisant, comme pour la muscovite de Malakialina leurs valeurs, nous trouvons un âge traces de

84 10^6 ans qui, après correction, donnerait un âge réel de 155 10^6 ans alors que l'âge rubidium/strontium est 498 10^6 ans.

TABLEAU 8

Origine	Age traces (10^6 ans)	Réf.	Autres datations		
			Age (10^6 ans)	Méthode	Réf.
A) Rhodésie	475	37	475	K/A	32
B) Malakialina (Madagascar)	575	19	514	Rb/Sr	19
C) Ampanobe (Madagascar)	310	19	498	Rb/Sr	19
D) Grabo (Côte d'Ivoire)	400	19	1950	Pb/Pb	19
E) Madagascar (1)	-	-	353	K/A	33
F) Bahia (Brésil)	-	-	821	K/A	34
G) Puy St Jean (Limagne)	-	-	Miocène inférieur	Palyno Stratigr.	35
H) Chauriat (Limagne)	-	-	Miocène inférieur	Palyno. Stratigr.	35
I) Dyke du Vaulmier (Cantal)	-	-	300	K/A Stratigr.	36
J) Madagascar (2)	-	-	-	-	-
K) Niquelandia (Brésil)	-	-	-	-	-
L) Mont d'Ambazac (Limousin)	-	-	-	-	-

Pour le troisième mica étudié par ces auteurs, la muscovite de Grabo (Figure 18 courbe D), le facteur de correction est 2,63. L'âge traces indiqué par les auteurs est 400 10^6 ans; cet âge recalculé par nous-mêmes à partir de leurs données serait 108 10^6 ans et deviendrait, après la correction par le facteur 2,63, 284 10^6 ans alors que l'âge plomb est 1950 10^6 ans.

Pour expliquer les divergences que nous constatons pour tous les échantillons entre les âges traces et les âges établis par d'autres méthodes, nous avons vérifié un certain nombre de points :

A) Mica de Rhodésie.

De nouvelles déterminations d'âge par le potassium/argon effectuées par H. BELLON au

Laboratoire de Pétrographie de la Faculté des Sciences d'Orsay et par Y. CORNETTE et B. DAVID au Centre des Faibles Radioactivités, ont donné $597 \cdot 10^6$ ans au lieu de $475 \cdot 10^6$ ans. Par ailleurs, ce mica a aussi été daté par G. FERRARA, au Laboratoire de Géologie Nucléaire de Pise, par la méthode rubidium/strontium; cette datation a donné : $628 \cdot 10^6$ ans.

B,C,D) Micas de Malakialina, Ampanobe et Grabo.

Pour ces trois micas, qui donnent tous trois des âges traces nettement inférieurs à ceux obtenus par les autres méthodes, deux hypothèses peuvent être avancées :

1) Les mesures de la teneur en uranium effectuées par MAURETTE et al sont nettement surestimées, ce qui peut être dû au fait qu'à l'époque où elles ont été effectuées, on mesurait l'uranium par l'intermédiaire du rendement de fission du barium 140 au lieu de mesurer directement la fission de l'uranium 235, ce qui peut introduire des erreurs dans le calcul de la fraction d'uranium 235 qui a subi la fission.

2) Les muscovites que l'on a datées ont été chauffées deux fois dans leur histoire, une première fois, il y a environ $62 \cdot 10^6$ ans pour la muscovite de Malakialina, $155 \cdot 10^6$ ans pour celle d'Ampanobe et $284 \cdot 10^6$ ans pour celle de Grabo, à une température suffisamment élevée pour effacer toutes les traces préexistantes, et une deuxième fois à une température qui n'a eu comme effet que de faire disparaître un certain nombre de traces.

Les autres méthodes de datation utilisées pour ces trois échantillons ne nous permettent pas de choisir entre l'une ou l'autre hypothèse puisque, à l'encontre de la méthode potassium/argon, les méthodes rubidium/strontium et plomb/plomb, ne sont pas sensibles à un effet de température.

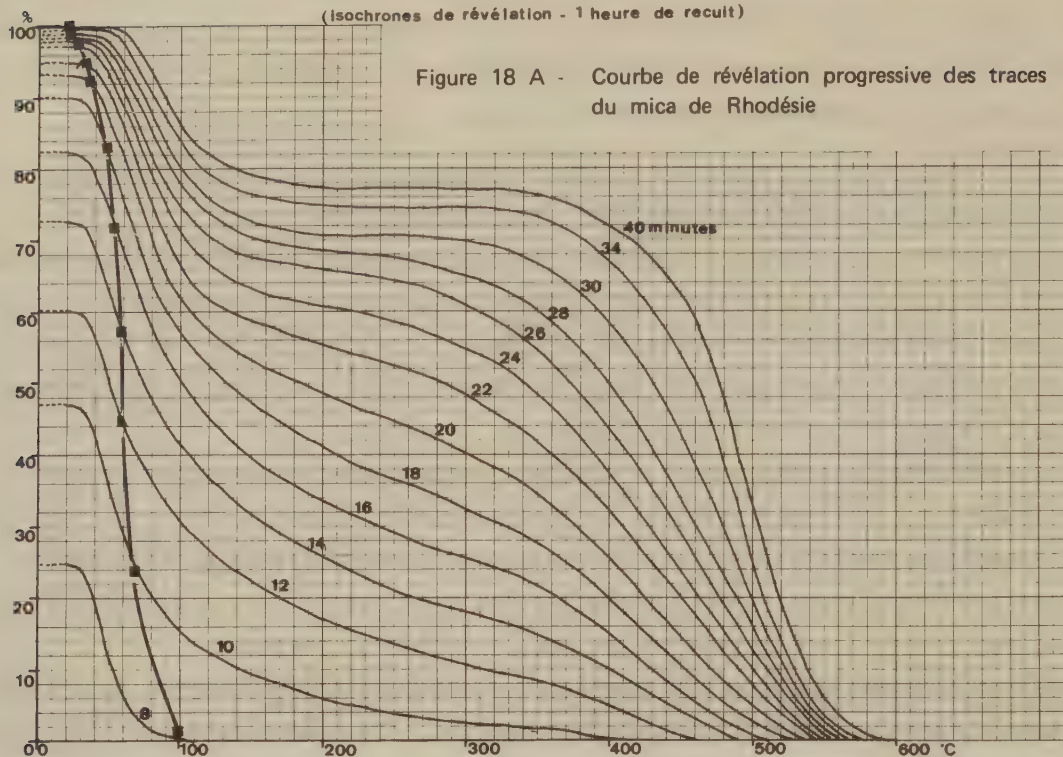
Nous avons donc entrepris de refaire, sur les trois échantillons, des mesures d'uranium sur les mêmes surfaces que celles sur lesquelles on a compté les traces, afin de redater ces muscovites.

Le tableau 9 donne une comparaison entre les teneurs en uranium données par MAURETTE et al (19) et les valeurs que nous avons obtenues. Dans la dernière colonne nous donnons les nouveaux âges traces obtenus, sans la correction indiquée par la révélation progressive.

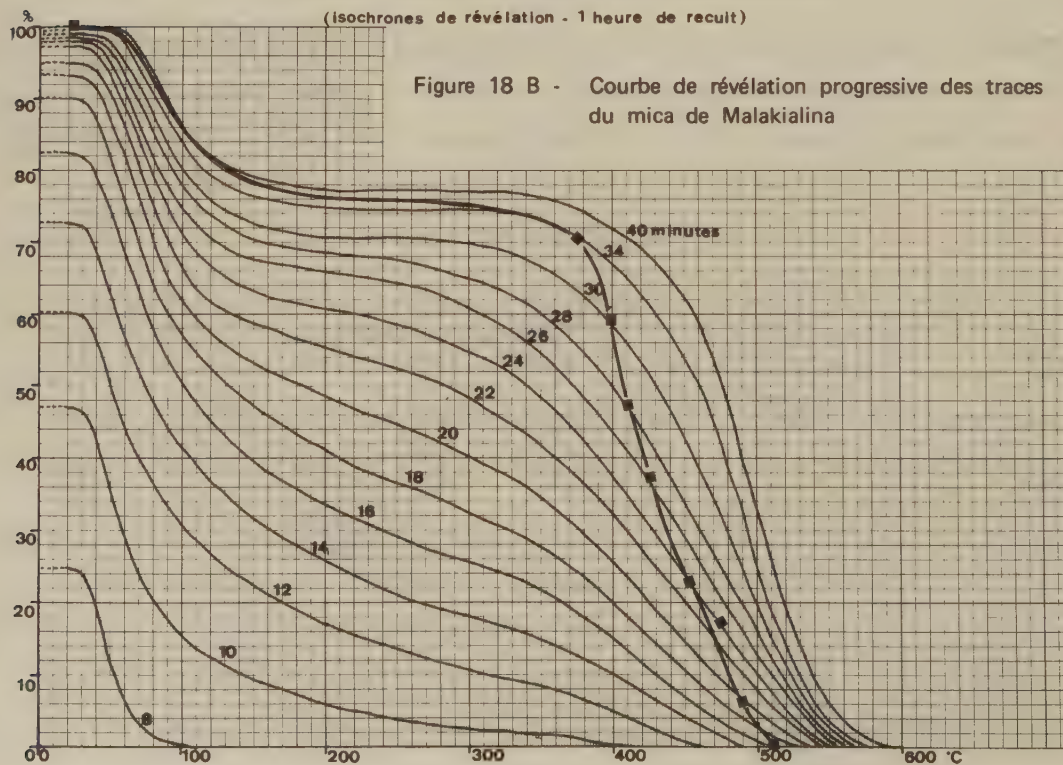
TABLEAU 9

Echantillon	Teneur en U MAURETTE et al (atomes/atomes)	Nouvelle estimation (atomes/atomes)	Âges 10^6 ans
Malakialina	$5,5 \cdot 10^{-9}$	$4,56 \cdot 10^{-10}$	137
Ampanobe	$8,3 \cdot 10^{-10}$	$2,88 \cdot 10^{-10}$	258
Grabo	$8,0 \cdot 10^{-10}$	$1 \cdot 10^{-9}$	79

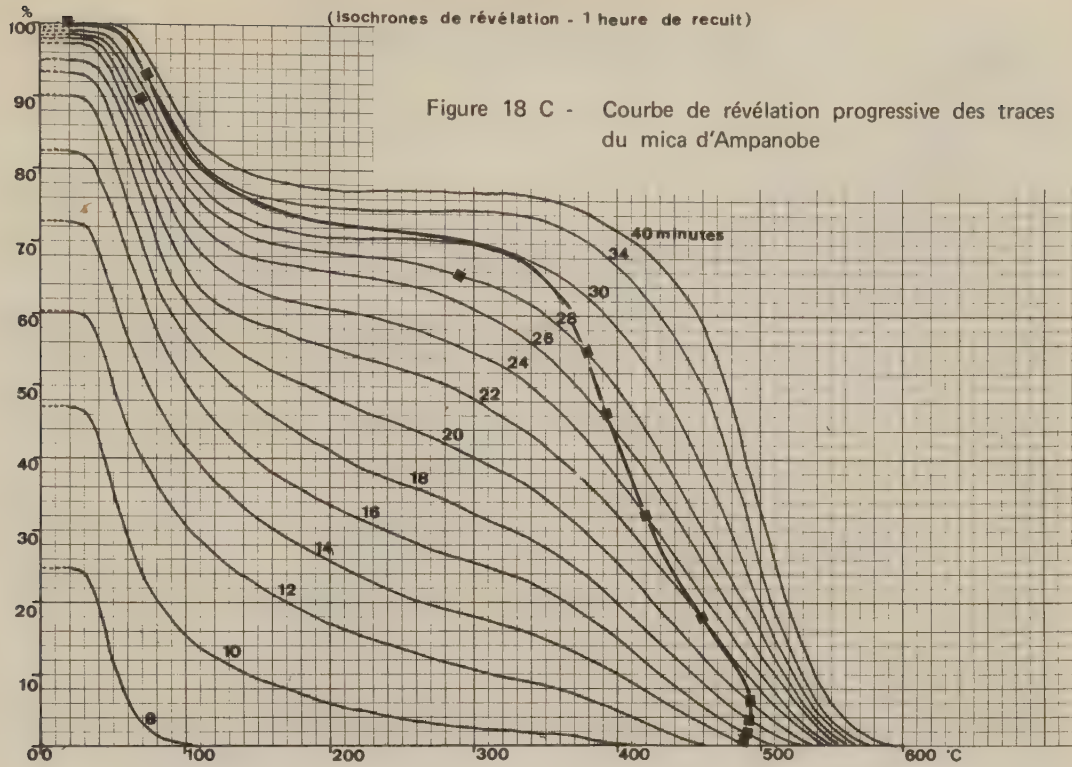
ABAUQUE POUR CORRECTION D'AGE DES MUSCOVITES
(isochrones de révélation - 1 heure de recuit)



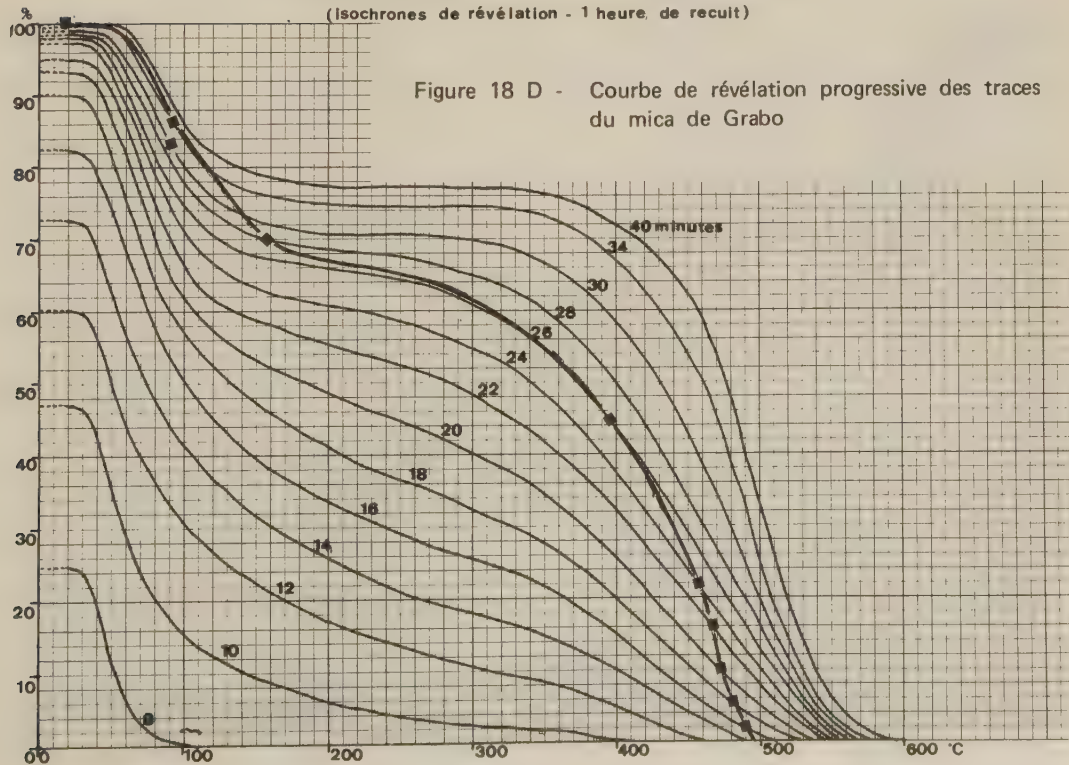
ABAUQUE POUR CORRECTION D'AGE DES MUSCOVITES
(isochrones de révélation - 1 heure de recuit)



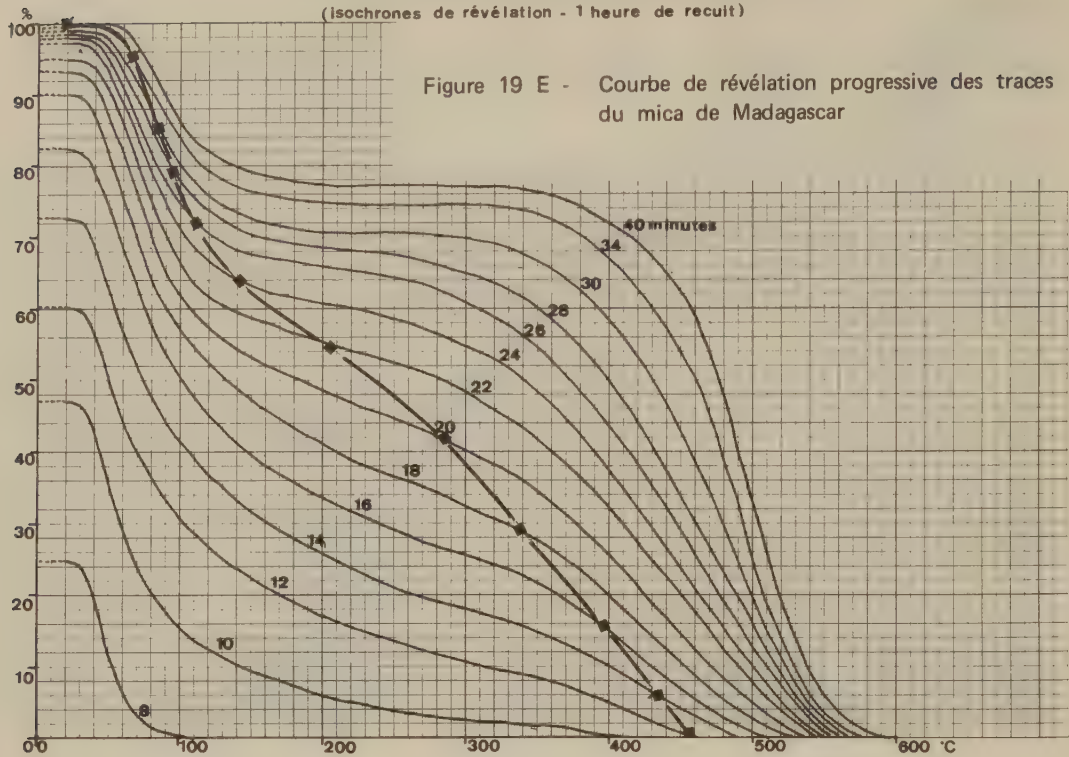
ABAQUE POUR CORRECTION D'AGE DES MUSCOVITES
(isochrones de révélation - 1 heure de recuit)



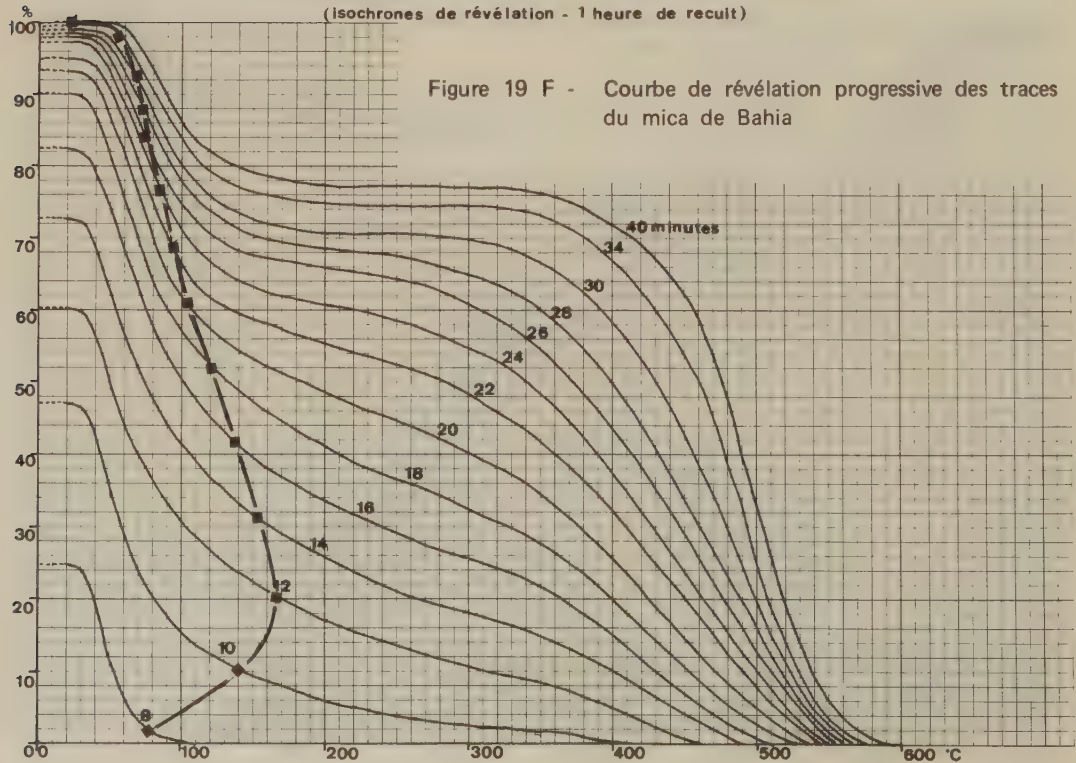
ABAQUE POUR CORRECTION D'AGE DES MUSCOVITES
(isochrones de révélation - 1 heure de recuit)



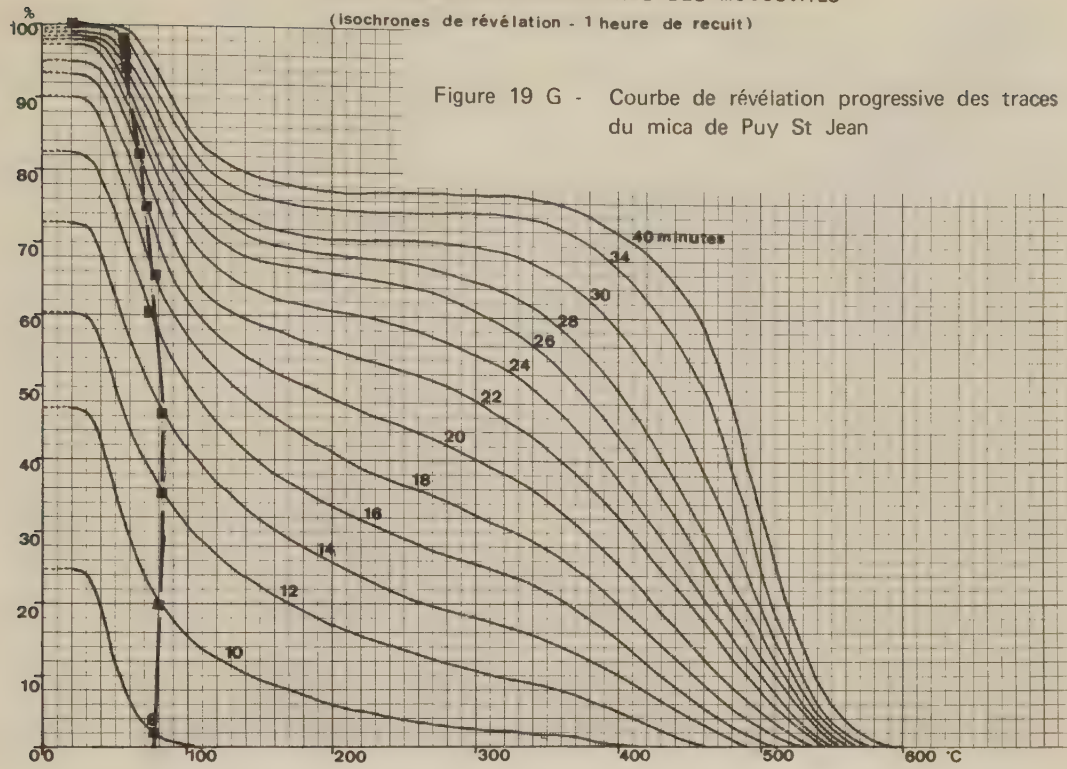
ABAQUE POUR CORRECTION D'AGE DES MUSCOVITES
(isochrones de révélation - 1 heure de recuit)



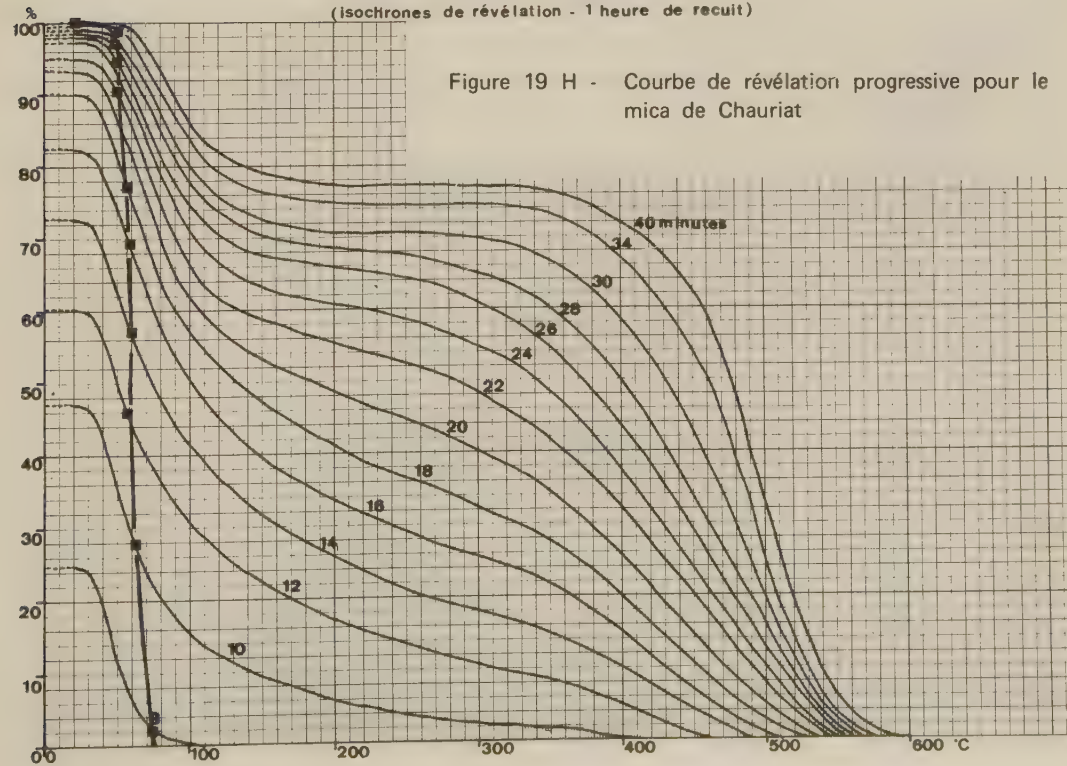
ABAQUE POUR CORRECTION D'AGE DES MUSCOVITES
(isochrones de révélation - 1 heure de recuit)



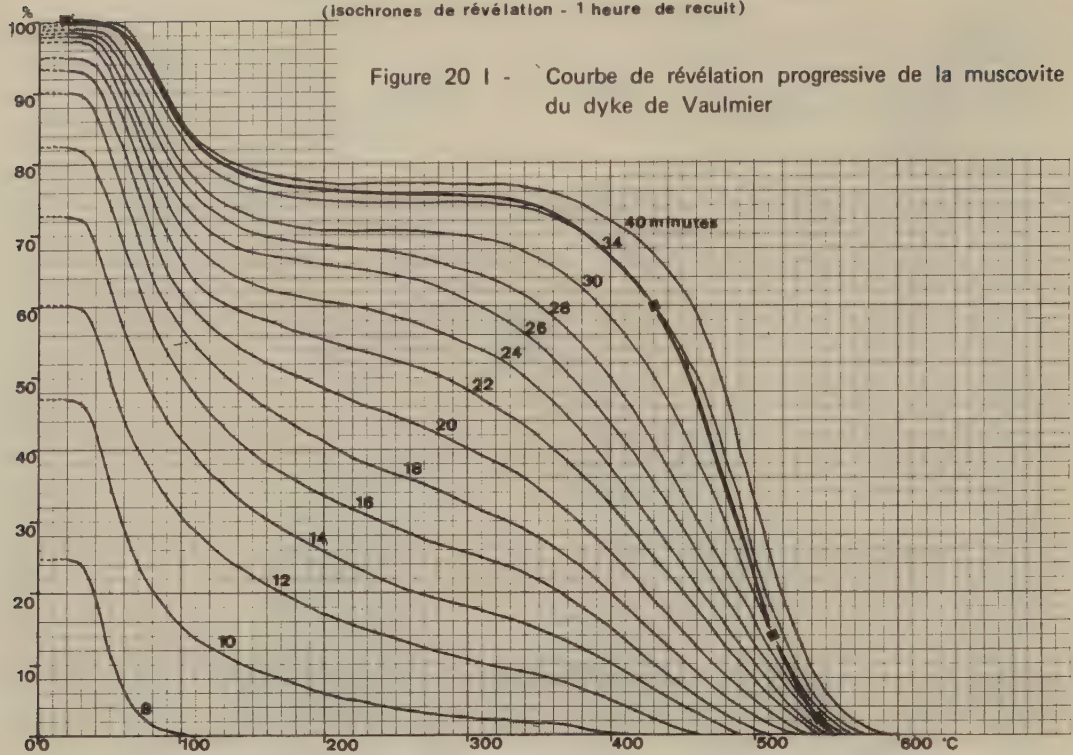
ABaque POUR CORRECTION D'AGE DES MUSCOVITES
(isochrones de révélation - 1 heure de recuit)



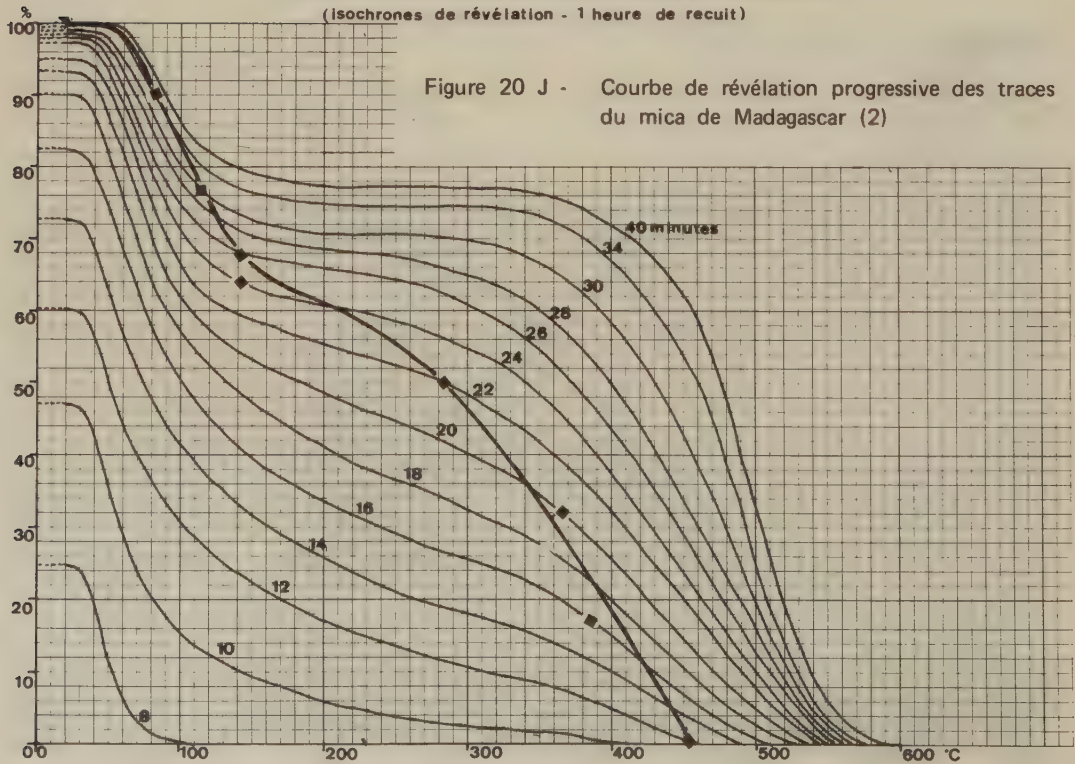
ABaque POUR CORRECTION D'AGE DES MUSCOVITES
(isochrones de révélation - 1 heure de recuit)



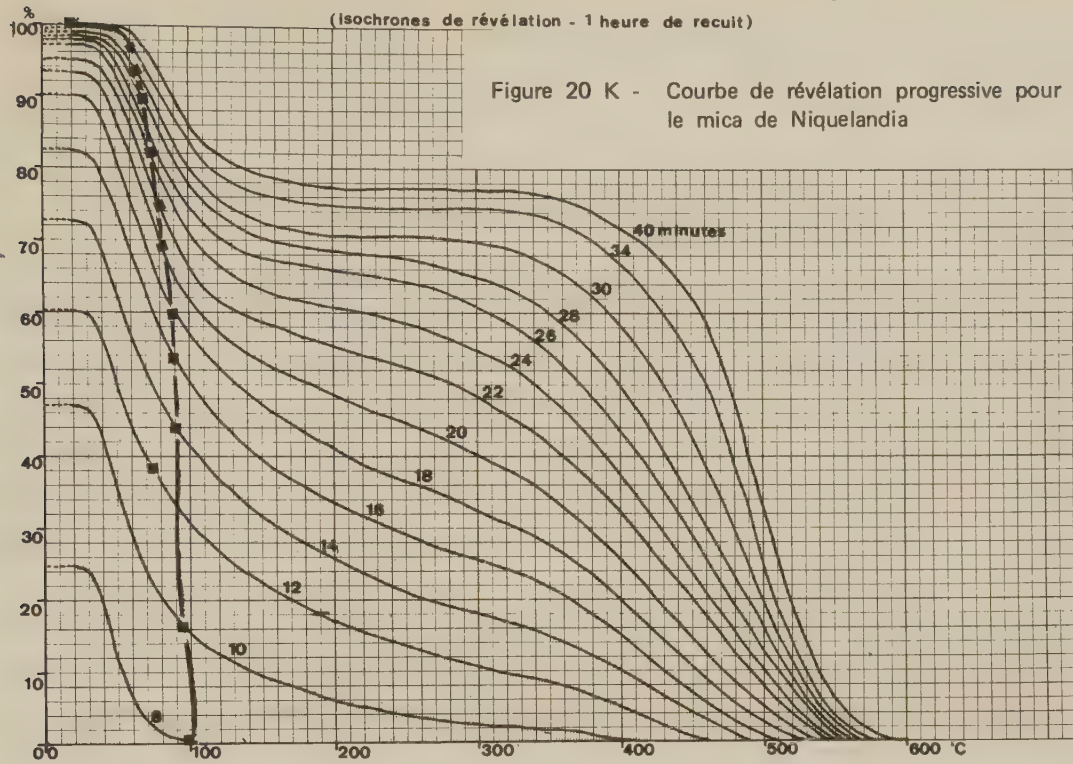
ABaque POUR CORRECTION D'AGE DES MUSCOVITES
(isochrones de révélation - 1 heure de recuit)



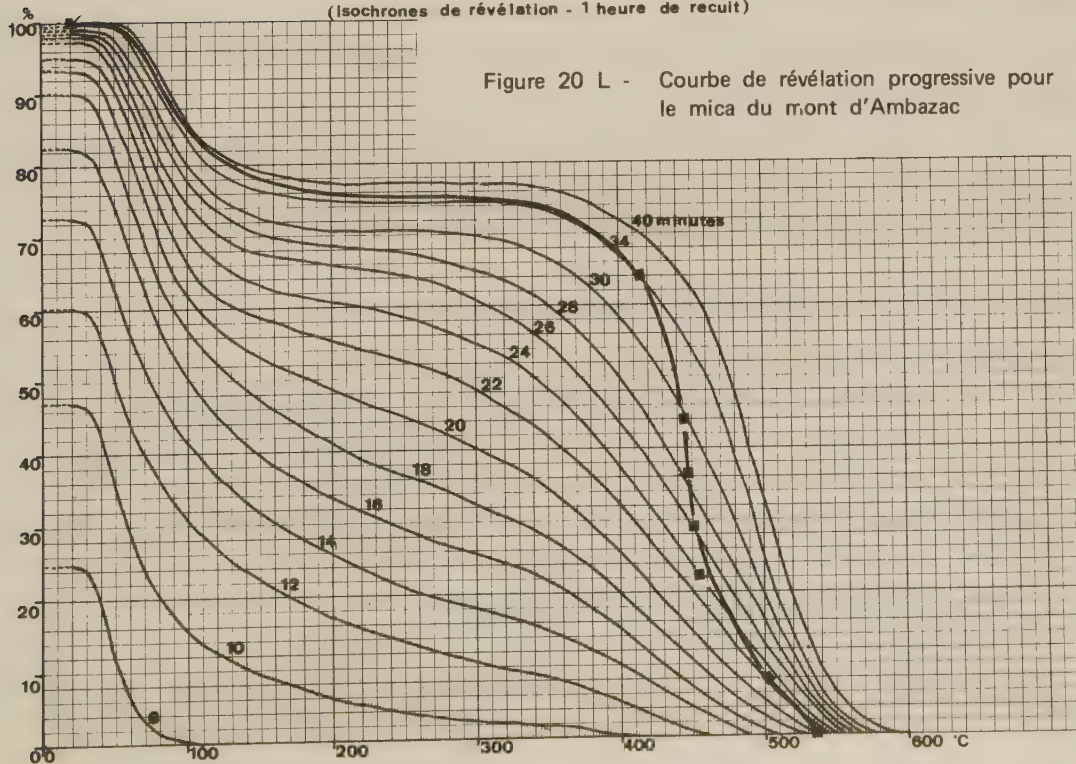
ABaque POUR CORRECTION D'AGE DES MUSCOVITES
(isochrones de révélation - 1 heure de recuit)



ABaque POUR CORRECTION D'AGE DES MUSCOVITES
(isochrones de révélation - 1 heure de recuit)



ABaque POUR CORRECTION D'AGE DES MUSCOVITES
(isochrones de révélation - 1 heure de recuit)



Par ailleurs, nous avons étudié 8 micas muscovite qui n'avaient pas encore été datés par la méthode des traces.

Les figures 19 (E,F,G et H) et 20 (I,J,K et L) donnent les courbes de révélation progressive de ces huit échantillons.

La courbe E représente une muscovite de Madagascar dont l'âge potassium/argon est $353 \cdot 10^6$ ans (33). La mesure de la densité de traces et de la teneur en uranium donne un âge de $171 \cdot 10^6$ ans. La courbe E nous indique un facteur de correction égal à 1,69, ce qui donne un âge traces égal à $290 \cdot 10^6$ ans.

La courbe F représente une muscovite d'Encruzilhada dans la province de Bahia au Brésil dont l'âge potassium/argon est $821 \cdot 10^6$ ans. L'âge traces non corrigé est $652 \cdot 10^6$ ans le facteur de correction étant 1,30, ceci conduit à un âge traces corrigé de $846 \cdot 10^6$ ans.

La courbe G représente la révélation progressive d'une muscovite prélevée dans une pépérite du Puy St Jean (Puy de Mur) en Limagne; cette pépérite est datée par les méthodes palynologiques et stratigraphiques comme étant du Miocène inférieur (35). L'âge traces non corrigé est $21 \cdot 10^6$ ans, le facteur de correction indiqué par la courbe est 1,05, ce qui donne un âge traces corrigé égal à $22 \cdot 10^6$ ans.

La courbe H est la courbe de révélation progressive de la muscovite de Chauriat; la pépérite dans laquelle est incluse cette muscovite est stratigraphiquement contemporaine de la précédente. La forme de cette courbe est très voisine de celle de la courbe G, bien que les teneurs en uranium des deux échantillons soient très différentes (0,95 ppm pour Puy Saint Jean et 2,3 ppm pour Chauriat) on trouve des âges traces concordants puisque l'âge traces non corrigé de la muscovite de Chauriat est $19 \cdot 10^6$ ans et devient, après correction, $20 \cdot 10^6$ ans.

La courbe I donne la révélation progressive d'une muscovite du granite du dyke du Vaulmier (Cantal) qui a été daté par la stratigraphie comme étant contemporain d'un granite de la même région daté lui-même par le potassium/argon (36) à environ $300 \cdot 10^6$ ans; l'âge traces non corrigé est environ $15 \cdot 10^6$ ans, le facteur de correction est égal à 20, ce qui donne un âge traces corrigé d'environ $300 \cdot 10^6$ ans.

La courbe J est la courbe d'une deuxième muscovite de Madagascar, cette courbe est analogue à celle qu'on a trouvée pour l'échantillon E. L'âge traces non corrigé est $160 \cdot 10^6$ ans, le facteur de correction étant 1,61, l'âge traces réel est $269 \cdot 10^6$ ans.

La courbe K a été établie pour la muscovite de Niquelandia (Brésil). Cette courbe est peu déformée, l'âge traces apparent est $460 \cdot 10^6$ ans et le facteur de correction 1,19, l'âge traces réel est donc $550 \cdot 10^6$ ans.

La courbe L, muscovite d'une pegmatite du Mont d'Ambazac (Limousin), par contre, a été chauffée de façon importante. La densité de traces fossiles de cette muscovite est très faible (environ $25/\text{cm}^2$), ce qui ne nous permet pas de donner avec précision l'âge traces apparent; celui-ci serait toutefois voisin de $1,8 \cdot 10^6$ ans et après correction par le facteur 10 indiqué par la courbe, il devient $18 \cdot 10^6$ ans.

Le tableau 10 résume l'ensemble de ces résultats.

II. - DISCUSSION DES RESULTATS.

A) Muscovite de Rhodésie.

La courbe de révélation progressive de ce mica nous montre qu'il n'a pas été chauffé pendant toute son histoire géologique. Les âges trouvés par les traces et par la méthode potassium/argon sont compatibles.

Par ailleurs, on peut noter que cet échantillon, qui a une teneur en uranium de 46 ppb présente une répartition régulière des traces de fission induites, même à des flux élevés (10^{17} neutrons/cm²) la répartition de l'uranium est très homogène.

B) Muscovite de Malakialina.

Il semble que cette muscovite a subi un réchauffement correspondant à une heure de recuit à 510°C.

L'âge obtenu, après correction, par la méthode des traces est en accord avec les autres déterminations d'âge.

C) Muscovite d'Ampanobe.

On trouve pour cette muscovite une température de réchauffement équivalente à 460°C pendant 1 heure; la correction donne un âge traces en très bon accord avec les autres résultats.

D) Muscovite de Grabo.

D'après l'abaque, de réchauffement qu'aurait subi ce mica serait équivalent à 490°C pendant 1 heure. Cependant, si l'on applique la correction, on trouve encore un âge beaucoup plus jeune que celui trouvé par la méthode plomb/plomb. Cette muscovite provient d'une pegmatite voisine de Grabo, l'âge plomb/plomb donné ici est celui de la pegmatite de Grabo même. Trois hypothèses pour la discordance entre les âges sont possibles :

1) Cette muscovite n'est pas contemporaine des thorianites et uranites qui ont été datées, ce qui est peu probable.

2) Cette muscovite a été réchauffée à une température et pendant un temps suffisants pour effacer toutes les traces il y a $207 \cdot 10^6$ ans, puis a subi un second réchauffement que nous mettons en évidence par la méthode de révélation progressive.

3) Cette muscovite a été le siège de phénomènes hydrothermaux importants ayant amené tardivement une quantité importante d'uranium. Cette hypothèse est d'autant plus vraisemblable que l'on se trouve dans une région riche en minéraux uranifères et thorifères et que, par ailleurs, la distribution des longueurs de traces induites dans ce mica présente comme longueur plus probable 10μ . Cette répartition de longueur de traces est caractéristique d'une migration d'origine hydrothermale de l'uranium (cf annexe II, figure II-2).

E et J) Muscovites de Madagascar.

La muscovite de Madagascar (1) était en partie destinée à mettre la méthode au point, elle a été achetée dans le commerce, sans qu'on puisse nous en préciser l'origine exacte. L'âge traces corrigé et l'âge potassium/argon sont concordants. La parfaite similitude de la courbe de la muscovite de Madagascar (2) avec la muscovite de Madagascar (1) nous incite à penser que ces deux micas ont la même origine.

TABLEAU 10

Origine	Age traces apparent (10 ⁶ ans)	Facteur de correction	Age traces corrigé (10 ⁶ ans)	Age par autres méthode (10 ⁶ ans)
A) Rhodésie	480	1,1	528 $\pm$ 23	597 (K/A) 628 (Rb/Sr)
B) Malakialina	137	4	549 $\pm$ 70	514 (Rb/Sr)
C) Ampanobe	258	1,85	477 $\pm$ 50	498 (Rb/Sr)
D) Grabo	79	2,63	207 $\pm$ 40	1950 (Pb/Pb)
E) Madagascar (1)	171	1,69	290 $\pm$ 26	353 (K/A)
F) Bahia	652	1,30	846 $\pm$ 76	821 (K/A)
G) Puy St Jean	21	1,13	23 $\pm$ 2	Miocène inférieur.
H) Chauriat	19	1,05	20 $\pm$ 2	Miocène Inférieur.
I) Granite du dyke du Vaulmier	15	20	300 $\pm$ 80	300 (K/A)
J) Madagascar (2)	160	1,69	269 $\pm$ 19	-
K) Niquelandia	460	1,19	550 $\pm$ 65	-
L) Monts d'Am- bazac.	1,8	10	18 $\pm$ 7	-

F) Muscovite de Bahia.

Cette muscovite provient du plateau d'Encruzilhada qui est précambrien. L'âge traces corrigé de 846 10⁶ ans n'est donc pas en contradiction avec la stratigraphie. L'âge potassium/argon est 821 10⁶ ans.

La courbe de révélation progressive montre, comme nous l'avons vu au chapitre précédent, que cette muscovite a probablement été chauffée il y a environ 169 10⁶ ans. AMARAL et al (37) ont signalé qu'une intense activité volcanique aurait eu lieu un peu au Sud de cette région il y a environ 147 10⁶ ans; il est probable que cette intense activité volcanique a eu des répercussions dans la région d'Encruzilhada. Depuis cette époque, un certain nombre de traces fossiles ont a nouveau été enregistrées.

G et H) Muscovites de Puy Saint Jean et de Chauriat.

Les muscovites sur lesquelles on a effectué les datations proviennent de brèches mi-volcaniques, mi-sédimentaires plus connues en Limagne sous le terme de pépérite. Ces brèches à dynamisme intrusif particulier doivent être considérées comme des hyaloclastites. Leur

mise en place s'est effectuée, au Puy Saint Jean, à partir d'un magma originel sous-saturé comme l'indique la présence d'enclaves de péridotites et de minéraux de profondeur tels que diopsides et titano-magnétite. On observe en outre, dispersés dans le ciment calcaro-siliceux, des grains de quartz, de feldspaths ou de muscovite, en minéraux isolés ou en agglomérats, ainsi que des enclaves sédimentaires silicifiées. Or nous savons que la série sédimentaire de la Limagne débute par une arène granitique, et ces enclaves enallogènes ne sont en fait que des lambeaux arrachés et entraînés lors de la montée d'un magma basique très fluide. La température de celui-ci (environ 1200°C) étant nettement supérieure à 600°C a permis ainsi d'effacer toutes les traces de fission pouvant exister au préalable dans la muscovite. L'âge mesuré pour ce mica indique donc l'âge de formation des pépérites. Si un remaniement par les eaux intervient ensuite, ce qui est le cas pour l'échantillon étudié, les mesures d'âge ne seront en rien affectées. On constate, en effet, sur la courbe de révélation progressive que la correction à apporter dans le cas d'un éventuel réchauffement est négligeable. La pépérite de Chauriat appartient à la même formation.

Ces pépérites ont pu être datées stratigraphiquement par l'observation d'un gisement de diatomites situé non loin du col de Jallat (Puy de Mur), qui a montré que ce dépôt n'est en réalité qu'un placage reposant sur des pépérites remaniées analogues à celles du Puy Saint Jean. Une étude palynologique attribue à cette diatomite un âge Miocène moyen (Helvétien-Tortonien) (35).

L'âge trouvé par la méthode des traces sur la muscovite confirme donc bien l'antériorité des pépérites et il n'y a pas de désaccord avec la stratigraphie du lieu.

1) Dyke du Vaulmier.

Ce dyke affleure à l'entrée du village de Vaulmier (côté aval de la vallée du Mars). Il s'agit d'un dyke basaltique intrusif dans une passée de granite nébolitique, autochtone, au sein d'un gneiss hétérogène à biotite et muscovite. La formation intrusive a une épaisseur de 58 cm.

Le calcul du gradient de température dans le granite, du contact jusqu'à 50 cm, donne, en utilisant le modèle de J. C. JAEGER (38,39), les valeurs suivantes :

au contact	: 465°C
à 30 cm	: 255°C
à 50 cm	: 200°C

Le temps de refroidissement a pu être évalué à 30 heures.

Sur onze échantillons prélevés de zéro à 50 cm du contact nous n'avons pas trouvé de traces fossiles. Etant donné l'énergie d'activation des traces de haute énergie dans la muscovite, l'échantillon au contact devrait avoir 96% des traces effacées après 20 heures à 465°C. Cependant, il faudrait une durée de chauffage beaucoup plus grande (5 ans) pour produire le même effet sur l'échantillon à 30 cm. Quant à celui prélevé à 50 cm, où la température, d'après le modèle de J. C. JAEGER, n'a pas dépassé 200°C, la durée du réchauffement devrait avoir été de 200 ans pour faire disparaître 96% des traces jusqu'alors enregistrées.

On pourrait supposer qu'il s'agissait là d'un dyke d'alimentation continue qui ne répondrait donc plus au modèle de J.C. JAEGER. Les durées de 5 et 200 ans ne peuvent cependant être admises pour un dyke d'alimentation continue pour lequel on admet des durées de réchauffement de quelques mois au maximum. Le gradient théorique ne serait donc pas celui que nous venons de discuter, il serait nettement moins atténué, justifiant ainsi l'effacement des traces jusqu'à 50 centimètres du contact.

Par ailleurs, l'échantillon que nous avons daté a été prélevé à 10 mètres du dyke; il ne présente que 5% des traces qu'il devrait avoir, d'après la courbe de révélation progressive. La seule explication plausible serait donc un réchauffement général, pendant le volcanisme. Si la température s'est maintenue supérieure à 150°C, le volcanisme local aurait duré 7 000 ans.

Compte tenu de la teneur en uranium de la muscovite (1 ppm) on devrait trouver $15 \cdot 10^4$ traces/cm². Si le réchauffement a eu lieu il y a 1 million d'années, ce mica devrait présenter $5 \cdot 10^2$ traces nouvelles par centimètre carré, densité facilement mesurable. En fait, on ne peut, d'après la courbe de révélation, mettre en évidence de traces postérieures au réchauffement. On peut donc, en première approximation, affirmer que le réchauffement s'est arrêté il y a moins de 1 million d'années.

En prenant les valeurs données par la courbe de révélation progressive, l'âge traces trouvé est $300 \cdot 10^6$ ans; il est en parfait accord avec l'âge potassium/argon du granite voisin.

K) Niquelandia

Cette muscovite provient de pegmatites du complexe ultra-basique de S. Josè de Tocantins dans la Serra da Mantiqueira dans l'état de Goiás (Brésil). Cette pegmatite se trouve dans un dyke intrusif dans des gabbros; ces gabbros sont précambriens mais le dyke n'a pas encore été daté; il est certainement postérieur aux gabbros. L'âge traces trouvé pour la muscovite étant $550 \cdot 10^6$ ans, cette muscovite doit donc être Cambrienne.

L) Muscovite des Monts d'Ambazac

Cette muscovite provient de pegmatite des Monts d'Ambazac (Haute Vienne). Cette pegmatite se présente en filons d'orientation N.E - S.W. localisés dans un des principaux massifs de la chaîne granulitique de la Haute Vienne.

La granulite, c'est-à-dire un granite à deux micas, riche en muscovite, qui constitue l'ossature des Monts d'Ambazac, est une roche à grains moyens et à texture équante intrusive dans des micaschistes et embréchites. La granulite a été datée par VIALETTE en 1965 à $301 \pm 8 \cdot 10^6$ ans.

La pegmatite étudiée est formée d'un ensemble de cristaux centimétriques de muscovite et de phlogopite.

L'âge traces corrigé de cette pegmatite est $18 \cdot 10^6$ ans. D'après la courbe de révélation progressive, cette muscovite a été fortement réchauffée; il n'y a pas eu de nouvelles traces enregistrées depuis ce réchauffement. Cependant, comme nous l'avons signalé, le nombre de traces fossiles est très faible, ce qui entache la datation d'une forte erreur. Cet âge nous semble toutefois trop jeune pour être pris en considération sans une vérification par une autre méthode.

CONCLUSIONS

Dans ce travail, deux parties peuvent être distinguées.

Dans la première partie qui concerne l'étude physico-chimique du phénomène des traces, nous avons pu, en suivant la révélation progressive des traces induites dans des micas muscovite chauffés ensuite à différentes températures, montrer qu'il y avait une relation entre le temps nécessaire à l'apparition de la première trace, le pourcentage de traces révélables et la température.

Ces caractéristiques nous ont amené à conclure que l'on était en présence de deux sortes de défauts ayant des énergies d'activation et des vies moyennes différentes, ces deux sortes de défauts pouvant coexister dans une même trace. Cependant, on peut considérer que 23% des traces sont caractérisées par une basse énergie d'activation (0,80 eV) et une courte vie moyenne (10^3 ans) et 77% des traces sont caractérisées par une haute énergie d'activation (1,25 eV) et une longue vie moyenne ($7 \cdot 10^9$ ans).

Cette étude a permis d'établir expérimentalement une abaque permettant, à partir d'une courbe de révélation progressive d'un échantillon quelconque de mica muscovite

- 1) de savoir si ce mica a été chauffé au cours de son histoire géologique,
- 2) de connaître le pourcentage de traces que ce réchauffement a fait disparaître, donc d'obtenir un facteur de correction de l'âge,
- 3) d'évaluer l'âge du réchauffement si celui-ci est assez ancien pour permettre, en fonction de la teneur en uranium, l'enregistrement de traces nouvelles en quantité suffisante (plus de 10 % des traces résiduelles),
- 4) de calculer la température maximale de réchauffement.

On a pu ainsi dater par les traces une douzaine de micas muscovite en donnant les âges traces apparents et les âges traces réels.

Parmi ceux-ci, huit avaient été préalablement datés par une autre méthode, soit méthode nucléaire (potassium/argon, rubidium/strontium ou plomb/plomb) soit par des méthodes géologiques (palynologie, stratigraphie).

Pour sept d'entre eux, alors que les âges traces apparents étaient inférieurs aux âges donnés par les autres méthodes, les âges traces corrigés sont en très bon accord avec les résultats des autres méthodes de datation. La huitième muscovite est une muscovite de Grabo (Côte d'Ivoire), l'âge donné est l'âge plomb/plomb d'une formation voisine, cet âge étant attribué à la muscovite par des considérations stratigraphiques. L'âge traces trouvé, même après correction est beaucoup trop jeune. Cependant, l'étude détaillée de la répartition de longueur des traces induites nous a permis de montrer que le désaccord était probablement dû à l'intervention de phénomènes hydrothermaux ayant apporté de l'uranium entre les feuillets de mica; la détermination de la teneur en uranium donne donc une valeur beaucoup trop élevée et conduit par conséquent à un rajeunissement apparent de cette muscovite. Pour certaines de ces muscovites incluses dans des roches datées stratigraphiquement par analogie avec d'autres formations datées elles-mêmes par des méthodes nucléaires, on a pu préciser cette analogie. C'est ainsi que l'on a daté la pépérite du Puy Saint Jean.

La méthode des traces, appliquée ainsi, permet aussi d'étudier en détail les phénomènes de thermométamorphisme, par exemple, dans la muscovite du granite du dyke du Vaulmier, on a constaté un effacement total des traces jusqu'à 50 centimètres du contact. Les calculs de la température, effectués à partir du modèle de J.C. JAEGER, ne permettent pas d'expliquer cet effacement total des traces car il nécessiterait que la muscovite ait été maintenue à 200°C pendant 200 ans. L'hypothèse d'un dyke d'alimentation continue pourrait en partie expliquer ce phénomène, cependant, à 10 mètres du contact on trouve encore que 95% des traces ont été effacées; pour cet échantillon, l'âge traces corrigé correspond à l'âge du granite environnant. Pour obtenir un tel gradient dans le nombre des traces en fonction de l'éloignement, il faudrait qu'il y ait eu un réchauffement général à 150°C pendant 7 000 ans et que ce volcanisme ait lieu il y a moins d'un million d'années car on ne décèle pas la présence de traces nouvelles bien que la teneur en uranium soit 1 ppm.

La méthode que nous avons mis au point, permet, non seulement d'obtenir des âges traces correspondant à la réalité, mais elle permet aussi d'étudier l'histoire thermique des minéraux et d'étudier par conséquent des phénomènes géophysiques.

Cette méthode pourrait utilement être étendue à d'autres minéraux que la muscovite, ceux-ci n'ayant pas la même sensibilité au réchauffement que la muscovite; des études très fines de thermométamorphisme pourraient être entreprises en utilisant plusieurs minéraux de la même formation.

Par ailleurs, la technique de révélation progressive peut permettre d'étudier les phénomènes de réchauffement et de chocs, aussi bien dans les météorites que dans les roches lunaires.

ANNEXE I

PRINCIPE DE LA METHODE DE DATATION PAR LES TRACES DE FISSION

Le tableau I-1 montre que, dans les roches terrestres, les traces sont dues à la fission spontanée de l'uranium 238.

TABLEAU I-1

Elément	$\lambda_{\alpha} \text{ans}^{-1}$	$\lambda_{\text{ans}_F}^{-1}$	Abondance par rapport à ^{238}U	Evènements de fission par rapport à ^{238}U
^{232}Th	$4,98 \cdot 10^{-11}$	$\approx 10^{-21}$	$\approx 4/1$	$\approx 10^{-5}$
^{235}U	$9,65 \cdot 10^{-10}$	$4,1 \cdot 10^{-18}$	$1/137,7$	$5 \cdot 10^{-3}$
^{238}U	$1,54 \cdot 10^{-10}$	$0,69 \cdot 10^{-16}$	1	1

La méthode des traces consiste donc à calculer le nombre d'évènements de fission qui ont eu lieu dans l'histoire de l'échantillon par l'intermédiaire des traces enregistrées, et d'évaluer, ensuite, la quantité d'uranium 238 responsable de ces évènements. La loi de décroissance de l'uranium par fission nous permettra donc de calculer l'âge.

Si dans une unité arbitraire de volume on a actuellement (n_a) atomes d'uranium 238, dans l'intervalle de temps (t) qui sépare la formation du cristal de nos jours, (n_d) noyaux ont subi la décroissance totale. On peut écrire :

$$n_d = n_a (e^{\lambda t} - 1)$$

où λ est la constante de décroissance de l'uranium 238 par émission α , soit, d'après le tableau I-1, la constante de décroissance totale.

Si l'on désigne par λ_F la constante de décroissance par fission, une fraction $\frac{\lambda_F}{\lambda} n_d$ des noyaux qui ont décru ont décru par fission d'où :

$$n_F = \frac{\lambda_F}{\lambda} n_a (e^{\lambda t} - 1) \quad (1)$$

Si l'on veut calculer le nombre de ces évènements qui ont atteint une surface externe du cristal, il faut tenir compte non seulement de la distribution de l'uranium à l'intérieur du cristal (distribution supposée homogène), mais aussi de la répartition en énergie des

fragments, c'est-à-dire, de la distribution des longueurs des traces. Dans une surface plane quelconque, compte tenu de la distribution homogène de l'uranium à l'intérieur du cristal, la distribution de la longueur des traces peut être donnée par :

$$f(z, \Omega) dz d\Omega \quad (2)$$

et l'équation (1) devient :

$$n_F = \frac{\lambda F}{\lambda} n_a (e^{\lambda t} - 1) \int_{R_1}^{R_2} \int_0^{2\pi - 4n \Theta_c} f(\Omega, z) d\Omega dz \quad (3)$$

où Θ_c est l'angle critique d'enregistrement égal à $\arcsin \frac{V_T}{V_S}$

Si l'on prend $R_1 = R_0$ et $R_2 = 2R_0$, où R_0 est la longueur moyenne d'une trace d'un fragment de fission dans le détecteur, et si l'on examine une surface externe ($n = 1$), la valeur de l'intégrale (2) est $R_0/2$, pour $\Theta_c = 0$

En faisant $n_F = \rho_F$, densité de traces à la surface, et $n_a = C_u$, concentration en uranium 238, on peut écrire :

$$\rho_F = \frac{\lambda F}{\lambda} C_u (e^{\lambda t} - 1) \frac{R_0}{2} \quad (4)$$

Cette équation nous permet de calculer t , si l'on connaît C_u .

Les limites d'intégration dans l'équation (3) nous permettent d'envisager tous les cas possibles.

a) pour une surface externe, la solution est donnée par l'équation (4)

b) pour une surface interne, clivage après irradiation ($n = 2$) la solution est donnée par l'équation (3) intégrée de 0 à $2R_0$ ce qui donne pour $\Theta_c = 0$:

$$\rho_F = \frac{\lambda F}{\lambda} C_u (e^{\lambda t} - 1) R_0 \quad (5)$$

c) Si on juxtapose un détecteur auxiliaire ($n = 1$) à la surface S , ρ_F est donné par l'équation (3), mais la distribution des longueurs ira de 0 à $+R_0$.

La figure I-1 présente les distributions théoriques des longueurs des traces dans les trois cas.

Dans une surface externe, théoriquement, toutes les longueurs sont également probables. Une variation dans la distribution des longueurs peut dénoncer, soit une inhomogénéité dans la distribution de l'uranium, soit une efficacité de révélation inférieure à 100%. C'est le cas, par exemple, de certains verres. Dans ce cas, toutes les traces sont également raccourcies: la vitesse d'attaque de la surface (V_S) a une grande importance par rapport à la vitesse d'attaque de la trace (V_T) ; quand V_S se rapproche de V_T , la limite inférieure de l'intégrale de volume diminue.

Calcul de C_u

Pour connaître l'âge de l'échantillon, il faut connaître la quantité d'uranium responsable des traces fossiles comptées. De préférence, on doit mesurer l'uranium sur la même surface du détecteur que celle sur laquelle on a compté les traces fossiles. Il est donc plus efficace de faire appel à la méthode des traces, soit en effaçant dans une des surfaces de cli-

vage les traces fossiles, soit en juxtaposant un détecteur auxiliaire et en réirradiant l'échantillon par un flux connu de neutrons thermiques. La concentration en uranium sera donc calculée à partir de la fission induite par les neutrons thermiques sur l'uranium 235.

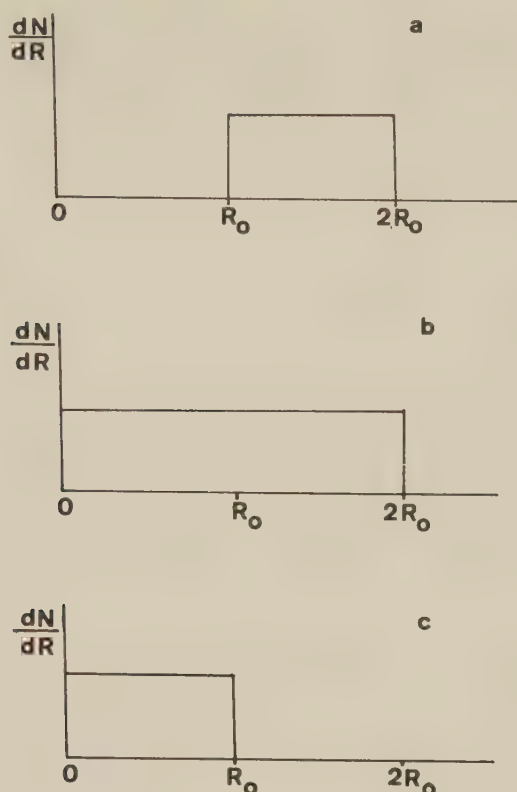


Figure 1 - 1

En admettant que la différence de masse des deux uranium (235 et 238) n'introduit pas d'erreur sur la distribution moyenne des longueurs, on obtient la concentration en uranium 238 par :

$$C_u = 137,7 \frac{2 \rho_i}{\phi_t \sigma_{235} R_o} \text{ atomes/cm}^3 \quad (6)$$

ou bien :

$$C_u = 137,7 \cdot 10^6 \frac{2 \rho_i M_u}{\phi_t \sigma_{235} R_o N M_m} \text{ ppm} \quad (7)$$

où

ρ_i est la densité de traces induites,

ϕ_t est le flux intégré de neutrons thermiques,

σ_{235} est la section efficace de fission de l'uranium 235,

R_o est la longueur moyenne d'une trace dans l'échantillon,

N est le nombre d'atomes par cm^3 de l'échantillon,

M_u est la masse de l'uranium et

M_m est la masse moyenne des atomes de l'échantillon,

Calcul de l'âge

L'âge t sera obtenu en combinant les équations(3) et (6) et en tenant compte des surfaces. Si les traces fossiles ont été révélées sur une surface de clivage et si l'on travaille sur cette même surface pour déterminer la concentration en uranium, on aura :

$$t = \frac{1}{\lambda} \ln \left(\frac{\rho_F}{2 \rho_i} \cdot \frac{\lambda}{\lambda_F} \cdot \sigma_{235} \cdot \phi_t \cdot \frac{1}{137,7} + 1 \right)$$

et pour $t < 10^9$ ans :

$$t = \frac{\phi_t \sigma_{235}}{137,7 \lambda_F} \cdot \frac{\rho_F}{2 \rho_i}$$

Le tableau I. II présente la variation du flux de neutrons en fonction de la concentration en uranium pour qu'on puisse obtenir une densité de traces idéale pour le comptage au microscope optique. En effet, on considère que le meilleur nombre de traces comptées au microscope optique est une vingtaine par champ de $0,042 \text{ mm}^2$ soit $5 \cdot 10^4$ traces/cm².

TABLEAU I. II

C_u (ppm)	ϕ_t neutrons/cm ²
0,01	$1,6 \cdot 10^{17}$
0,1	$1,6 \cdot 10^{16}$
1	$1,6 \cdot 10^{15}$
10	$1,6 \cdot 10^{14}$
100	$1,6 \cdot 10^{13}$
1000	$1,6 \cdot 10^{12}$

Le tableau I. III donne les densités de traces prévues par cm² en fonction de l'âge et de la concentration en uranium.

TABLEAU I. III

C_u (ppm) \ T	0,1 (10^6 ans)	1 (10^6 ans)	10 (10^6 ans)	100 (10^6 ans)	1000 (10^6 ans)
0,01	0,5	5	50	$5 \cdot 10^2$	$5 \cdot 10^3$
0,1	5	50	$5 \cdot 10^2$	$5 \cdot 10^3$	$5 \cdot 10^4$
1	50	$5 \cdot 10^2$	$5 \cdot 10^3$	$5 \cdot 10^4$	$5 \cdot 10^5$
10	$5 \cdot 10^2$	$5 \cdot 10^3$	$5 \cdot 10^4$	$5 \cdot 10^5$	$5 \cdot 10^6$
100	$5 \cdot 10^3$	$5 \cdot 10^4$	$5 \cdot 10^5$	$5 \cdot 10^6$	$5 \cdot 10^7$
1000	$5 \cdot 10^4$	$5 \cdot 10^5$	$5 \cdot 10^6$	$5 \cdot 10^7$	$5 \cdot 10^8$

Remarque : Pour un échantillon donné, un flux de $1,6 \cdot 10^{13}$ neutrons/cm² donne un nombre de traces induites égal au nombre de traces de fission en 10^6 ans.

Une densité de traces de 50/cm², même pour les monocristaux de mica, pose déjà des problèmes statistiques pour le calcul de l'âge. Au-delà de $5 \cdot 10^6$ traces/cm² le comptage par microscopie optique devient presque impossible. Si on prend cependant 50 traces/cm² comme limite inférieure, on peut dater des macrocristaux de mica contenant 1 ppm d'uranium à partir de 10^5 ans. Cependant, en général, les macrocristaux de muscovite présentent des teneurs en uranium nettement inférieures au ppm. Par ailleurs, les biotites, les apatites et les zircons, très abondants dans les roches et présentant en général de fortes teneurs en uranium, posent des problèmes du côté des tailles des cristaux et de l'inhomogénéité de distribution de l'uranium. On peut, malgré tout, affirmer que si, dans une roche, on a du zircon, de l'apatite et de la biotite, une manipulation soigneuse peut permettre de dater cette roche à partir de quelques dizaines de milliers d'années.

ANNEXE II.

PRECAUTIONS EXPERIMENTALES

I. - IMPERATIFS D'ECHANTILLONNAGE.

A) Choix des échantillons en fonction de l'homogénéité de la distribution de l'uranium.

La répartition irrégulière de l'uranium dans un cristal peut être due à deux phénomènes différents, soit des inclusions d'uranium, soit des migrations préférentielles d'uranium.

Les premières pourront être détectées facilement, soit par l'examen des traces fossiles, car si l'échantillon est suffisamment ancien cela se traduira par des zones où l'abondance des traces rendra tout comptage impossible, soit par l'examen du minéral irradié qui, après révélation présentera, lui aussi, des zones de traces trop denses pour être dénombrées (Figure II-1).

Dans le deuxième cas, on peut supposer, par exemple un ensemble de feuillets de mica dans lequel des phénomènes hydrothermaux ont conduit à une migration de l'uranium et à son dépôt dans une zone préférentielle, microfissure ou plan de clivage, sans toutefois que la concentration en uranium n'atteigne des valeurs aboutissant à un "noircissement" d'une zone.

Dans le premier cas, aucune correction ne peut être apportée et l'échantillon est inutilisable, mais aucune équivoque n'est possible.

Dans le second cas, seule une étude très détaillée de la répartition en longueur des traces permet de mettre en évidence cette inhomogénéité. En effet, la révélation des traces montre une répartition normale en surface, cependant, comme il n'y a pas de contribution de traces ayant pour origine des atomes d'uranium situés à l'intérieur du réseau cristallin, ou que cette contribution est négligeable, on aura une distribution anormale de longueur de traces, la longueur la plus probable étant centrée sur la valeur de R_0 (Figure II-2), alors que, comme nous l'avons vu dans l'appendice I (Figure I-1) dans le cas d'une répartition homogène de l'uranium dans tout le cristal, les longueurs de traces se trouvant entre 0 et $2R_0$ sont également probables.

L'âge que l'on trouverait, dans ce cas, serait approximativement l'âge du phénomène hydrothermal ayant donné lieu à cette migration de l'uranium. Cependant, dans ce cas, une préattaque acide d'un ensemble de feuillets non séparés (40) peut permettre de reconnaître les espaces interfeuillets qui n'ont pas été atteints par le phénomène hydrothermal. En effet, dans tous les espaces où l'uranium a pu pénétrer, l'acide pénétrera aussi et des traces seront révélées sur ces faces de clivage; par contre, si dans certains plans de clivage, on ne trouve dans ces conditions aucune trace révélée, il est très vraisemblable que l'uranium de migration n'a pu pénétrer et donc que les traces qu'on révélera ultérieurement seront

dues à la fission de l'uranium inclus dans le réseau cristallin depuis la formation du cristal.

B) Dosimétrie du flux de neutrons, utilisation de détecteurs auxiliaires.

L'erreur sur la détermination de l'âge d'un minéral dépend de l'erreur sur le comptage des traces fossiles, sur le comptage des traces induites et de la précision de l'évaluation du flux de neutrons.

Les deux premières causes d'erreur peuvent être minimisées par le comptage d'un grand nombre de traces, il devient alors évident qu'une connaissance la plus précise possible du flux améliorera la précision de la méthode.

Pour évaluer le flux de neutrons, à l'emplacement même où l'irradiation a lieu, on doit accompagner chaque irradiation d'un moniteur.

Un des facteurs très important auquel il faut porter grande attention est la géométrie d'irradiation, il faut, en effet, étant donné les possibilités d'irrégularité de flux dans le canal de la pile, qu'échantillon et moniteur soient ensemble.

D'une façon générale, trois types de moniteurs ont été utilisés :

1) Moniteur à réaction (n, γ).

On peut utiliser pour cela, par exemple, des fils de Cobalt 59, la réaction avec des neutrons thermiques donne du cobalt 60, émetteur γ , dont la section efficace est bien connue (19 barns).

2) Verre prédosé en uranium et makrofol.

Dans cette technique, on utilise les traces induites dans le makrofol au contact avec un verre à teneur en uranium connue. Cependant, si cette mesure est exacte pour les faibles flux ($< 10^{15}$ neutrons/cm² dans un canal à $0,5 \cdot 10^{12}$ neutrons/cm²/sec), pour des flux plus élevés, on a constaté que l'échauffement au cours de l'irradiation peut atteindre des températures de l'ordre de 100°C, ce qui conduit à un effacement partiel des traces (Figure II-3).

3) Mica muscovite sélectionné.

Il semble donc important d'utiliser un détecteur auxiliaire de même nature que l'échantillon dans lequel on veut doser l'uranium, tout au moins en ce qui concerne le comportement des traces vis à vis de la température.

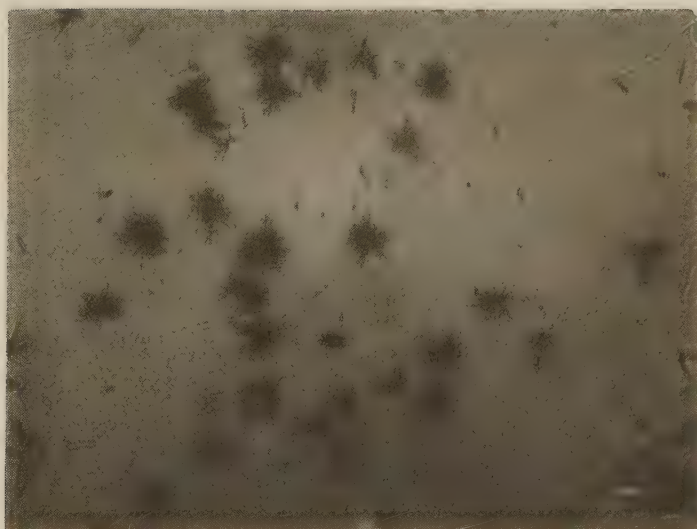
Si l'on dispose, par exemple, d'un mica dont la répartition en uranium est très homogène, on pourra l'utiliser comme moniteur au cours des irradiations.

Le mica de Malakialina est un très bon moniteur, et au cours de notre étude, nous avons pu montrer qu'une autre muscovite, celle de Rhodésie, était aussi un très bon moniteur.

L'intérêt de cette dernière méthode, consistant à utiliser comme moniteur un échantillon de même nature que l'échantillon à dater, réside dans le fait qu'elle élimine l'action d'un réchauffement possible de l'échantillon pendant l'irradiation. On a, en fait, une estimation non du flux réel pour les irradiations longues, mais d'un flux efficace pour la réaction. Dans l'utilisation des réactions telle que $^{59}\text{Co} (n, \gamma) ^{60}\text{Co}$, on mesure le flux réel et on ne tient pas compte d'une possibilité d'effacement thermique des traces induites dans l'échantillon, ce qui peut amener à une sous-estimation de la teneur en uranium donc à une surestimation de l'âge. Dans le deuxième cas, où le détecteur est plus sensible à la température que



50 μ



50 μ

FIGURE II-1 Inclusions d'uranium dans le mica muscovite de Grabo (Côte d'Ivoire) et de Lençois (Bahia, Brésil) après irradiation.

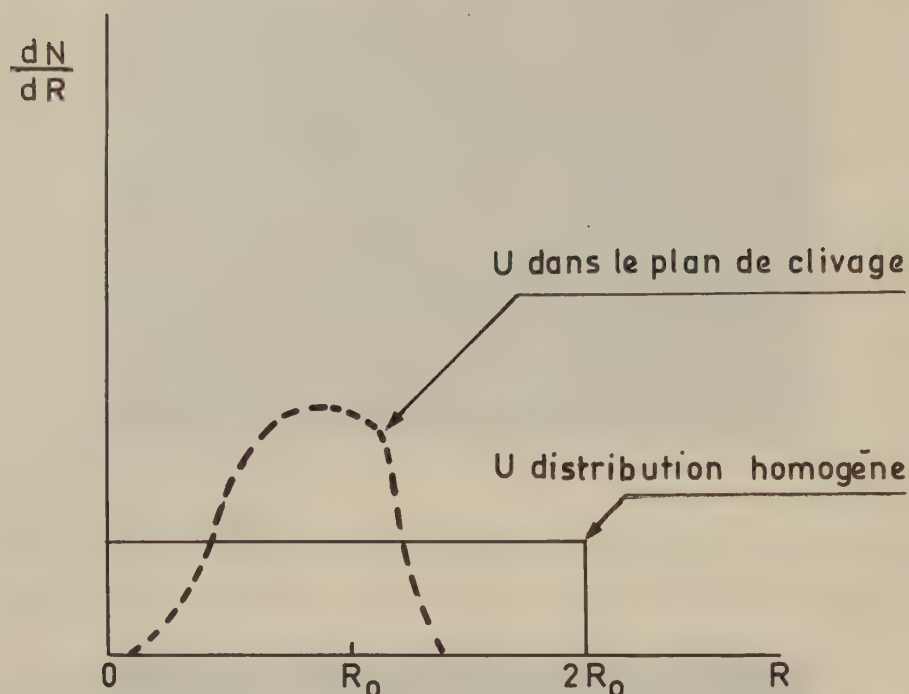


Figure II - 2

l'échantillon, on est conduit, au contraire, à une surestimation de la teneur en uranium de l'échantillon qui entraîne un rajeunissement de l'échantillon.

C'est pourquoi nous avons rapidement abandonné l'utilisation du détecteur auxiliaire verre + makrofol, et toutes nos mesures ont été effectuées avec le mica muscovite de Rhodésie comme moniteur du flux de neutrons.

C) Choix du flux d'irradiation.

Pour des raisons que nous exposerons dans la deuxième partie de ce chapitre, on aurait intérêt à effectuer les irradiations les plus courtes possibles; toutefois, comme nous l'avons vu dans le tableau II de l'annexe I, pour obtenir la densité idéale de traces à compter au microscope optique ($5 \cdot 10^4/\text{cm}^2$) le flux de neutrons à utiliser sera fonction de la teneur en uranium de l'échantillon, allant de $1,6 \cdot 10^{12} \text{ n/cm}^2$ pour un échantillon contenant 1000 ppm d'uranium à $1,6 \cdot 10^{17} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ pour un échantillon contenant 0,01 ppm d'uranium.

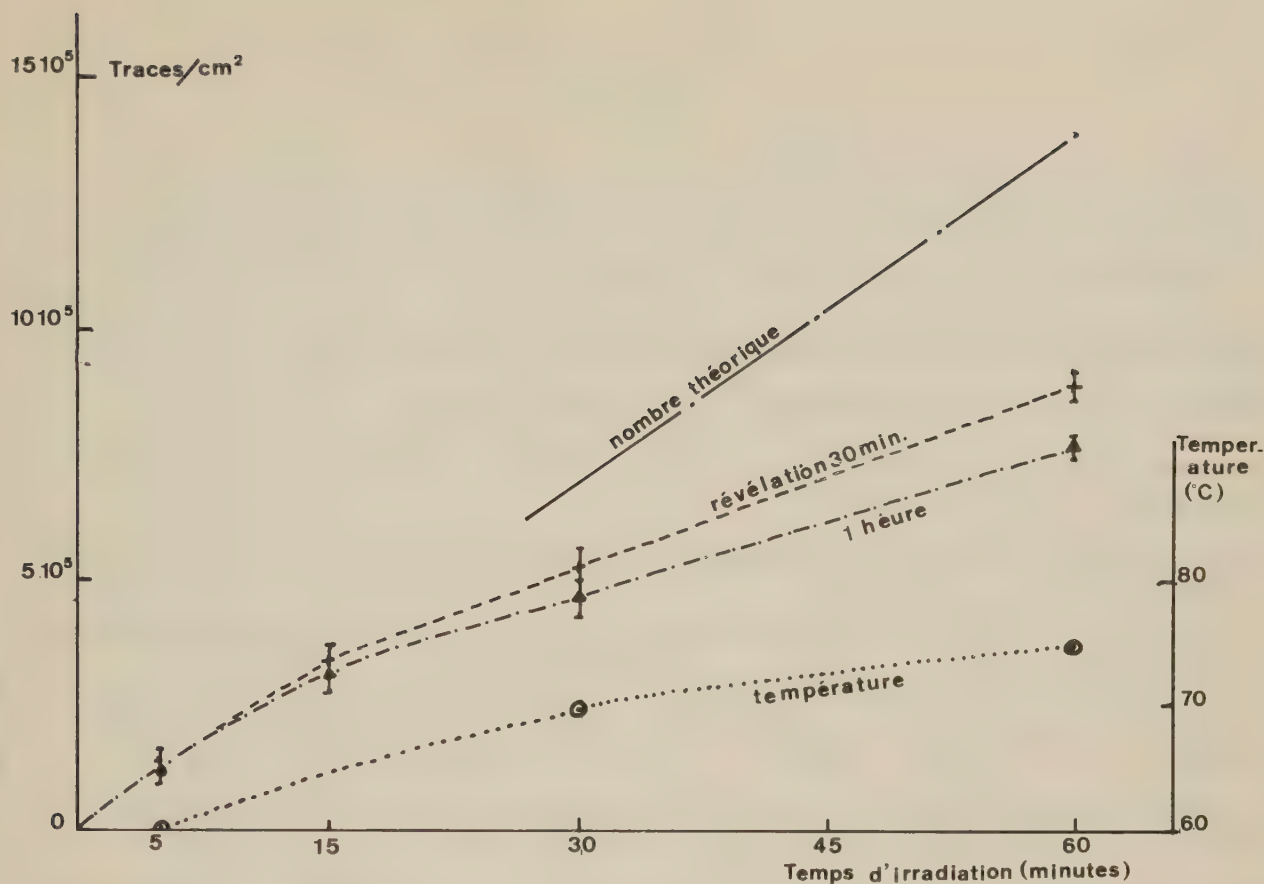


Figure II - 3

Les variations de teneurs en uranium dans les mêmes minéraux de différentes provenances sont trop grandes pour que l'on puisse évaluer directement le flux correct. C'est ainsi que la teneur en uranium des muscovites, par exemple, peut varier de 1 ppb à 1 ppm.

Il est donc nécessaire d'effectuer une irradiation préliminaire en déterminant un flux moyen. Malgré l'existence de valeurs extrêmes que nous venons de signaler, il existe une zone plus étroite de valeur probable de la teneur en uranium. La première irradiation se fera donc en utilisant pour le calcul du flux la valeur moyenne la plus probable. A partir de cette irradiation, d'une façon générale, on peut estimer grossièrement la teneur en uranium de l'échantillon et donc calculer le flux pour obtenir les meilleurs résultats.

Le tableau II-I donne, pour quelques minéraux, l'estimation du flux moyen d'essai en fonction de la teneur probable en uranium.

II. - IMPERATIFS DE TRAITEMENT DES ECHANTILLONS IRRADIES.

Au cours de l'irradiation pour déterminer la teneur en uranium des échantillons, un certain nombre de radionuclides sont formés.

Ils peuvent avoir des périodes plus ou moins longues, cependant, en raison des courts temps d'irradiation, l'activité des éléments de très longue période sera négligeable. Toutefois, les radionuclides formés peuvent présenter un danger pour le manipulateur si celui-ci ne prend pas les précautions nécessaires et, d'autre part, être une source importante de pollution pour un laboratoire dans lequel on fait, par ailleurs, des mesures de radioactivité à très bas niveau.

TABLEAU II-I

Minéral	Uranium ppm	ϕ max - ϕ min n/cm^2	ϕ moyen d'essai n/cm^2
Muscovite	0,001 à 0,05	$1,6 \cdot 10^{18} - 3,2 \cdot 10^{16}$	$2,3 \cdot 10^{17}$
Phlogopite	0,05 à 1	$3,2 \cdot 10^{16} - 1,6 \cdot 10^{15}$	$7,1 \cdot 10^{15}$
Biotite	0,5 à 10	$3,2 \cdot 10^{15} - 1,6 \cdot 10^{14}$	$7,1 \cdot 10^{14}$
Verre nat.	0,5 à 20	$3,2 \cdot 10^{15} - 8,0 \cdot 10^{13}$	$5,0 \cdot 10^{14}$
Apatite	5 à 100	$3,2 \cdot 10^{14} - 1,6 \cdot 10^{13}$	$7,1 \cdot 10^{13}$
Sphène	10 à 200	$1,6 \cdot 10^{14} - 8,0 \cdot 10^{12}$	$3,6 \cdot 10^{13}$
Zircon	20 à 2000	$8,0 \cdot 10^{13} - 8,0 \cdot 10^{11}$	$8,0 \cdot 10^{12}$

C'est pourquoi, sur des échantillons spécialement irradiés, nous avons fait des mesures d'activité β globale dont nous avons suivi la décroissance, et des mesures d'activité γ pour identifier les différents radionuclides induits par l'irradiation.

A) Mesure de l'activité β globale

Les mesures d'activité globale ont débuté 65 heures 45 après la sortie de la pile. Pour plus de sécurité et éviter des pollutions externes éventuelles, les échantillons, contenus dans des sachets en plastique, ont été scellés à chaud dans de nouveaux sachets n'ayant subi aucune contamination.

On a suivi la décroissance de l'activité β de deux échantillons : un verre du Corning Glass Museum servant de moniteur et un mica de Rhodésie irradiés par un flux intégré de l'ordre de 10^{16} neutrons/cm² (6 heures à $0,5 \cdot 10^{12}$ n/cm²/sec).

La figure II-4 donne la courbe de décroissance de l'activité β globale en fonction du temps entre le sixième jour et le vingtième jour après l'irradiation pour le verre, et la figure II-5 la décroissance de l'activité β globale entre le troisième jour et le quatorzième jour pour le mica de Rhodésie.

Le rendement de comptage de l'installation pour un mélange d'émetteurs de différentes énergies étant environ 20%, on constate que 6 jours après l'irradiation l'échantillon de verre

présente une activité d'environ 600.000 dpm soit 270 000 pCi. Après 20 jours l'activité est 1 100 pCi pour un échantillon de 0,2356 gramme.

Pour la muscovite de Rhodésie, 3 jours après l'irradiation on a 257 000 pCi, quatorze jours après, il ne reste plus que 2 200 pCi pour un échantillon de 0,079 gramme. Pour les mesures d'âge, on irradie des échantillons beaucoup moins importants, de l'ordre de 0,01 gramme ; l'activité résiduelle, après 14 jours, est donc, pour les micas, de l'ordre de 200 pCi, ce qui ne présente pas de danger de pollution pour le laboratoire car il n'y a en effet qu'environ 1/100 de cette activité qui passe en solution dans le révélateur. Pour le manipulateur, cette activité correspond, au contact, pendant un an, à une dose inférieure à 4 rem, la dose tolérable étant de l'ordre de 5 rem/an (41).

B) Mesure de l'activité γ

Les mesures ont été effectuées avec un détecteur germanium-lithium de volume 30 cc.

Les mesures ont été faites pendant 1/4 d'heure, 143 h 30 minutes après la sortie de la pile, pour détecter les éléments de courtes périodes, puis pendant 1 heure, 209 heures après la sortie de la pile, puis 10 heures, 257 heures après la sortie de la pile.

Dans le verre, on n'a pu détecter que du sodium 24 de période 15 heures, ce qui explique la très rapide décroissance de l'activité β .

La figure II-6 donne le spectre obtenu pour la mesure de 15 minutes du mica de Rhodésie, et la figure II-7 le spectre de 10 heures du même échantillon.

Les émetteurs γ détectés sont, par ordre de périodes croissantes, données dans le tableau II-II.

TABLEAU II-II

Emetteur	Période	Principale énergie γ
^{24}Na	15 heures	1369 KeV
^{131}Ba	12 jours	496 KeV
^{86}Rb	18,4 jours	1077 KeV
^{141}Ce	32,5 jours	145 KeV
^{59}Fe	45 jours	1 099 KeV
^{203}Hg	47 jours	283 KeV
^{46}Sc	84,9 jours	889 KeV
^{182}Ta	115, jours	67,5 KeV
^{134}Cs	2,05 ans	604 KeV
^{60}Co	5,27 ans	1173 KeV

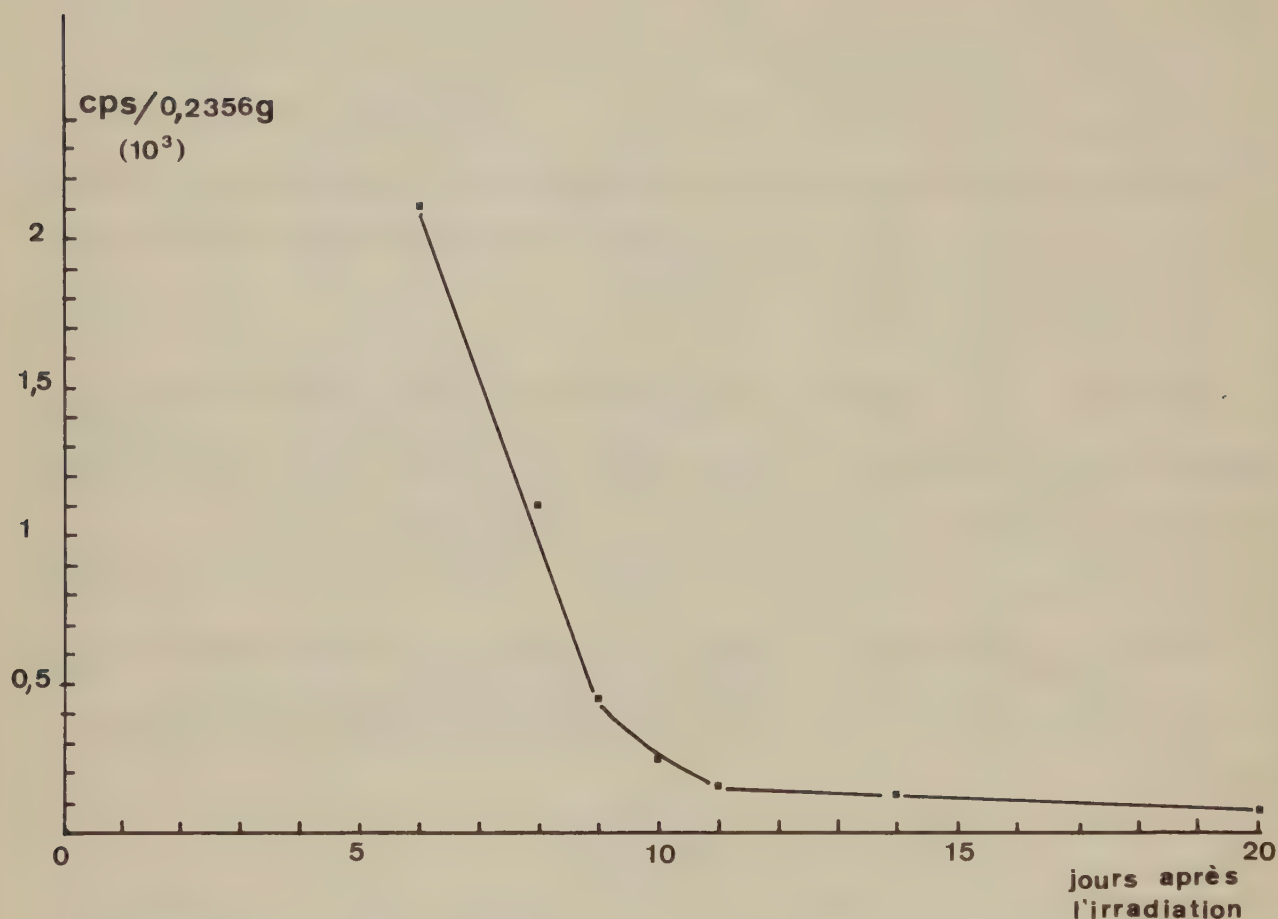


Figure II - 4

A partir de ces mesures, nous avons calculé l'activité due à chacun des éléments, 14 jours après la sortie de la pile. Le Tableau II-III donne les valeurs pour 0,01 gramme de mica.

L'activité totale serait, 14 jours après la sortie de la pile, 353 pCi. Tous ces émetteurs γ sont aussi émetteurs β . L'activité β globale au quatorzième jour a été mesurée et était 200 pCi/0,01 gramme, ce qui est en bon accord avec les mesures γ .

Par conséquent, la mesure de l'activité β globale est suffisante pour évaluer les risques de pollution et, en moyenne, une attente de 15 jours après la sortie de la pile semble suffisante.

TABLEAU II-III

Emetteur	Activité pCi/0,01g	Emetteur	Activité pCi/0,01g
^{24}Na	0,01	^{131}Ba	15,1
^{86}Rb	127,8	^{141}Ce	2,4
^{59}Fe	96,3	^{203}Hg	2,9
^{46}Sc	98,4	^{182}Ta	6,2
^{60}Co	3,5	^{134}Cs	1,0

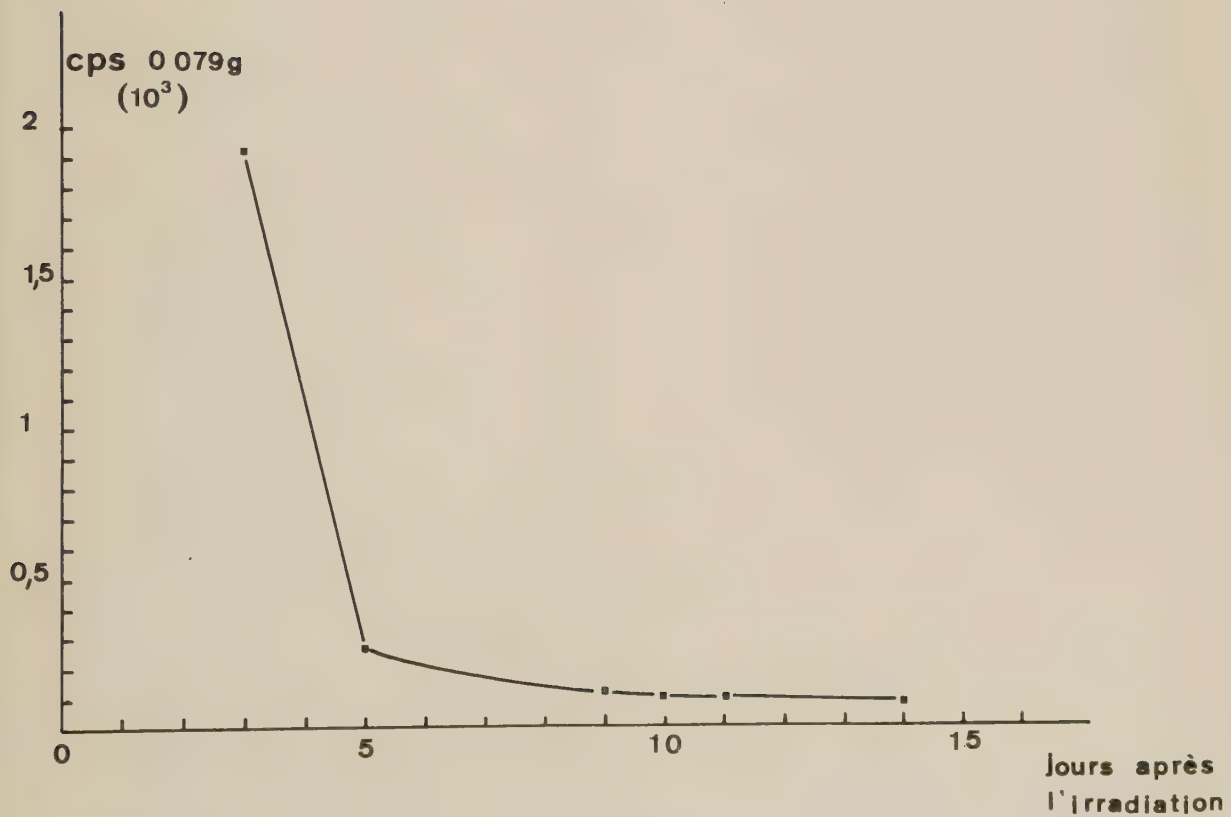
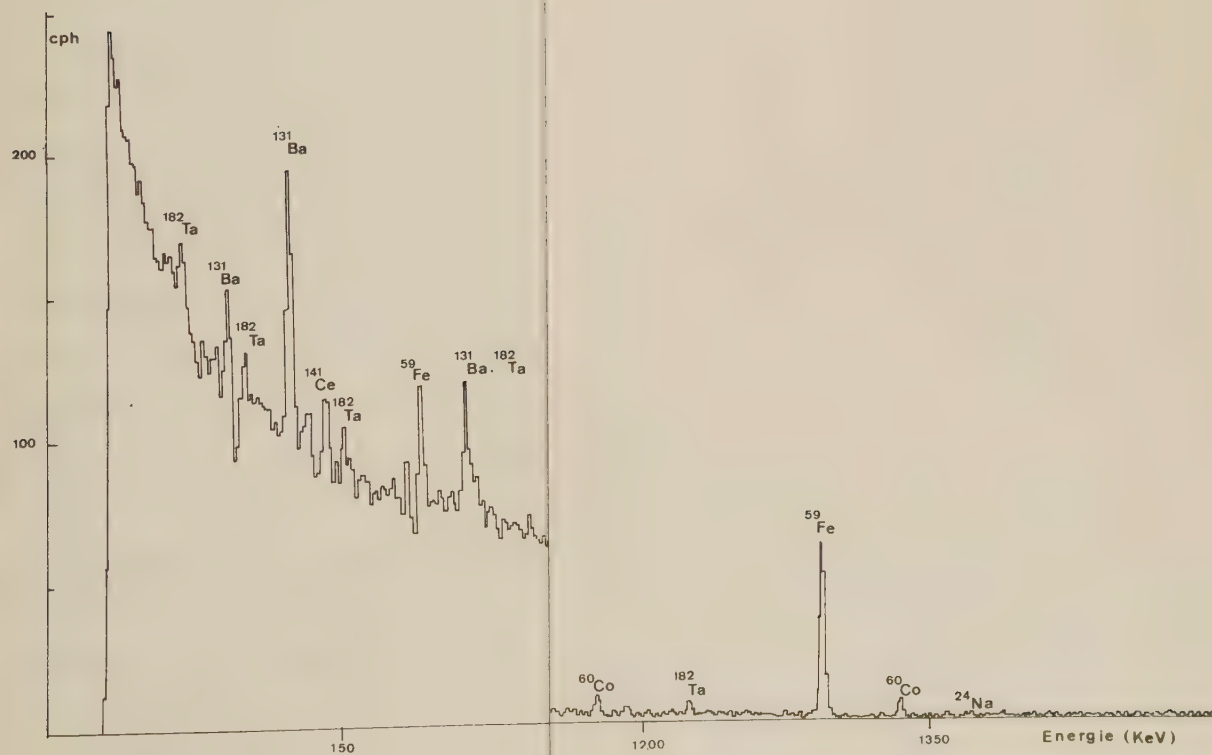
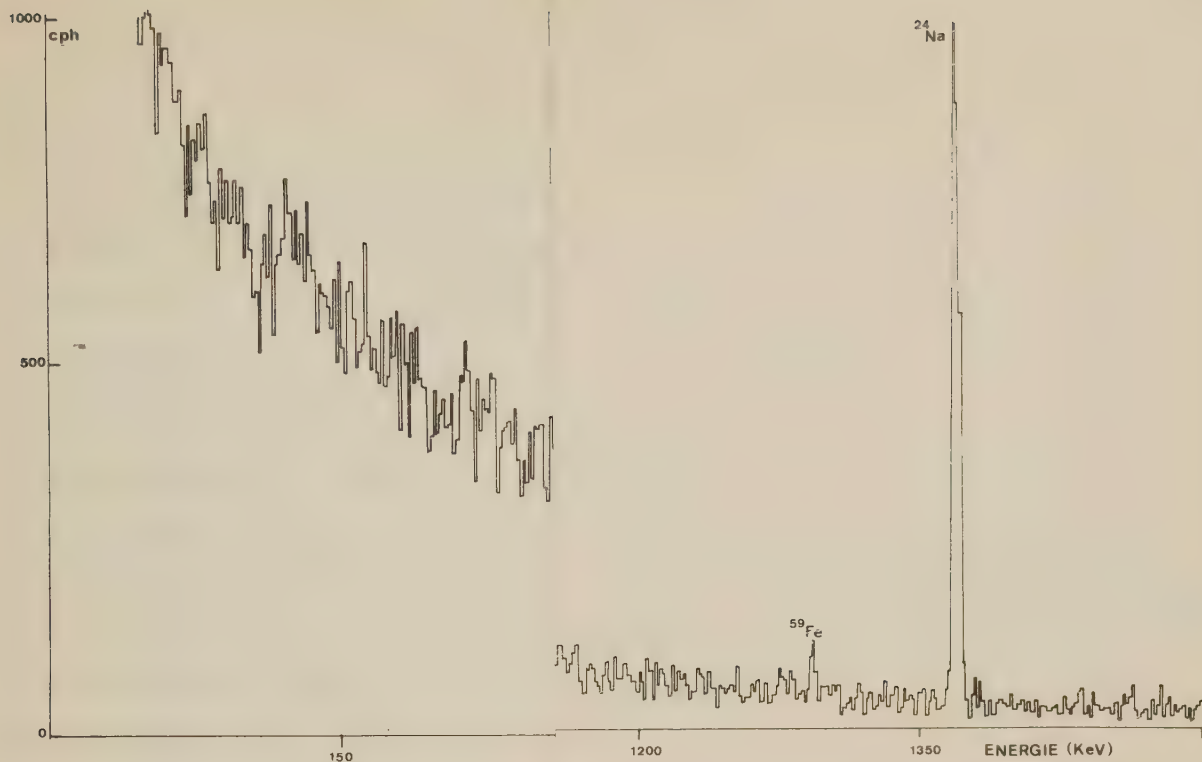


Figure II - 5



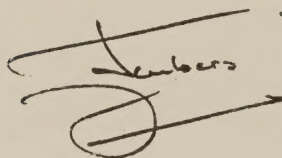
REFERENCES

- 1) SILK, E.C.H., BARNES, R.S. Phil. Mag. 4 - 970 - 1959.
- 2) PRICE, P.B., WALKER, R.M. Phys. Rev. Letters 8 - 217 - 1962
- 3) PRICE, P.B., WALKER, R.M. Nature 196 - 732 - 1962
- 4) FLEISCHER, R.L., PRICE, P.B., WALKER, R.M. Science 140 - 1221 - 1963
- 5) MAURETTE, M., PELLAS, P., WALKER, R.M. Nature 204 - 821 - 1964
- 6) FLEISCHER, R.L., PRICE, P.B., WALKER, R.M. Jour. Applied Phys 34 - 1963
- 7) FLEISCHER, R.L., PRICE, P.B., WALKER, R.M., HUBBARD, E.L. Phys. Rev. 133 - 5A - 1443 - 1964.
- 8) FLEISCHER, R.L., PRICE, P.B., WALKER, R.M. An. Rev. Nuclear Sc 15 - 1 - 1965.
- 9) MAURETTE, M. Thèse, Paris 1965
- 10) FLEISCHER, R.L., PRICE, P.B., WALKER, R.M., MAURETTE, M. J.G.R. 72 - 1 - 131 - 1967.
- 11) PRICE, P.B., FLEISCHER, R.L., PETERSON, D.D. et al. Physical Review letters 21 n°9 1968.
- 12) CANTELAUBE, Y. Thèse 3ème cycle Paris 1968
- 13) MAURETTE, M., THRO, P., WALKER, R.M., WEBBINK, R. Colloque inter. sur la recherche concernant les météorites Vienne, Août 1968
- 14) PRICE, P.B., WALKER, R.M. J.G.R. 68 - 16 - 1963
- 15) FLEISCHER, R.L., HART, H.R., JACOBS, I.S., PRICE, P.B., SCHWARZ, W.M., WOODS, R.T. General Electric. Solid state Phys. Lab. Rapport 69 - C 406 - 1969
- 16) FLEROV, G.N., PERELYGIN, V.P. Journées inter. étude de l'enregistrement des traces des particules chargées dans les solides isolants et leurs applications. Clermont Ferrand Mai 1969
- 17) OTGONSUREN, O., PERELYGIN, V.P., FLEROV, G.N. in: Communication of the joint institute for nuclear research. Dubna 1970
- 18) PRICE, P.M., WALKER, R.M. Applied Phys. Lett. 2 - 23 1963
- 19) MAURETTE, M., PELLAS, P., WALKER, R.M. Bull. Soc. Fr. Min. et Crist. LXXXVII 1964.
- 20) FLEISCHER, R.L., PRICE, P.B., WALKER, R.M. Geoch. Cosmochim. Acta 29 - 161 - 1965.
- 21) STORZER, D., WAGNER, G.A. Earth and Planet. Sc. Lett. 5 - 463 - 1969.

- 22) NAESER, C.W., FAUL, H. J.G.R. 74 - 2 - 705 - 1969.
- 23) POUPEAU, G. Journées inter. étude de l'enregistrement des traces des particules chargées dans les solides isolants et leurs applications. Clermont Ferrand. Mai 1969 .
- 24) HUANG, W.H., MAURETTE, M. WALKER, R.M. in : Radioactive dating and methods of low level counting. AIEA Vienne 1967 .
- 25) BIGAZZI, G. Earth. Planet. Sc. Lett. 3 - 434 - 1967.
- 26) FLEISCHER, R.L. PRICE, P.B. Journées inter. étude de l'enregistrement des traces des particules chargées dans les solides isolants et leurs applications. Clermont Ferrand, Mai 1969.
- 27) PELLAS.P. - Communication personnelle.
- 28) FLEISCHER, R.L. PRICE, P.B. WALKER, R.L. in : Radiometric dating for geologists Interscience Publ. 1968.
- 29) BROWN, W.L., FLETCHER, MACHLUP,S. Phys. Rev 90 - 709 - 1953.
- 30) DE MAINE, M.M. Thèse, Cambridge Univ. 1955.
- 31) DUPLATRE, G. Thèse Univ. Grenoble 1969
- 32) LATTES, C. Communication personnelle.
- 33) BELLON, H. Communication personnelle.
- 34) CORNETTE, Y. et DAVID, B. Communication personnelle.
- 35) BROUSSE, R. et GOUHIER, G. Communication personnelle.
- 36) BROUSSE, R. et MAURY, R. Communication personnelle.
- 37) AMARAL, G., CORDANI, U.G. KAWASHITA, K., REYNOLDS, J.H. Geochim. et Cosmochim. Acta 30, 159, 1966.
- 38) JAEGER, J.C. Amer. J. Sci. 255, 1957
- 39) JAEGER, J.C. Amer. J. Sci. 257, 1959
- 40) MEHTA, P.P., NAGPAUL, K.K. To be published in Indian Acad. of Sciences
- 41) DEVORET, R. Dangers des radiations atomiques, éléments de protection.
GAUTHIER VILLARS. Ed. 1961.

Vu et approuvé
ORSAY, le 13 avril 1971

Le Vice-Président du Centre d'Orsay

A handwritten signature in dark ink, appearing to read "Jean-Louis", with a stylized flourish below it.

